

Winkelkorrelationsuntersuchungen von Strahlenschäden in Palladium nach Neutroneneinfang

Inauguraldissertation
zur Erlangung der Doktorwürde
der Freien Universität Berlin
Fachbereich Physik

vorgelegt von
Reinhard Butt
aus Bielefeld
- Juli 1977 -

Winkelkorrelationsuntersuchungen von Strahlenschäden in Palladium nach Neutroneneinfang



Inauguraldissertation
zur Erlangung der Doktorwürde
der Freien Universität Berlin
Fachbereich Physik

vorgelegt von
Reinhard Butt
aus Bielefeld
- Juli 1977 -



1. Gutachter: Prof. Dr. K.H. Lindenberg

2. Gutachter: Prof. Dr. E. Matthias

Tag der mündlichen Prüfung: 12.9.1977

Inhaltsverzeichnis

	Seite
Zusammenfassung	1
1. Einleitung	3
2. Grundlagen	6
2.1 Der elektrische Feldgradient (EFG)	6
2.2 Die Meßmethode:	
Zeitdifferentielle Beobachtung der gestörten γ - γ - Winkelkorrelation (DPAC)	9
- Meßgleichungen	14
2.3 Aussagefähigkeit der DPAC bei Defektuntersuchungen	17
- Die mikroskopische Meßeigenschaft	17
- Aussagekraft der DPAC (DPAD) -Störfunktion	18
3. Die DPAC - Messung nach $^{110}\text{Pd}(n,\gamma)$ -Reaktion	22
3.1 Korrelierte Erzeugung von Sonden und Defekten	22
3.2 Kernphysikalische Eigenschaften der Meßsonde	23
^{111}Cd (^{111}Ag , $T_{1/2} = 7.5\text{d}$)	
3.3 Eigenschaften und Kennzeichen der Defekterzeugung	25
- Allgemeines	25
- Der Verlagerungsprozeß	26
- Stoßfolgen	28
- Stoßfokussierung	30
- Folgerungen für das $\text{Pd}(n,\gamma)$ -DPAC-Experiment	33
4. Experimentelles	36
4.1 Probenherstellung	
- Polykristallproben	36
- Einkristallprobe	36
- Bestrahlungstechnik und Probentransfer	40
4.2 Meßapparaturen	45

	Seite
4.3 Durchführung der Experimente	47
- Probenbestrahlungen	47
- Messungen und Probentemperaturen	48
5. Auswertung und Ergebnisse	51
- Polykristallmessungen	51
- Makroskopische Strahlenschädigung der Probe	53
- Einkristallmessungen	57
6. Diskussion	61
6.1 Eindeutigkeit der Defekte als Störursache	62
6.2 Die Defektkonzentration	64
6.3 Defektzuordnung der Sondenstörungen	66
- Deutung der Defekte mit Hilfe von Erholungsstufen	67
- Das Erholungsmodell	69
- Vergleichsbedingungen	70
- Das Erholungsverhalten der diskreten Quadrupolstörung	74
- Die Richtung des Defekts zur Sonde	83
6.4 Rückschlüsse auf den Mechanismus der Defekterzeugung	84
6.5 Übertragbarkeit der Defektzuordnung auf andere Experimente	88
Literaturverzeichnis	93

Zusammenfassung

Mit der Methode der zeitdifferentiellen, gestörten γ - γ -Winkelkorrelation (DPAC) wurde die Quadrupolwechselwirkung von ^{111}Cd - Sondenkernen mit den elektrischen Feldgradienten (EFG) von Punktdefekten in der kubisch flächenzentrierten Palladiummatrix untersucht.

Die Tieftemperaturbestrahlung (4.6K) von angereichertem ^{110}Pd -Metall mit thermischen Neutronen führt über die Einfangreaktion $^{110}\text{Pd}(n,\gamma)$ und den nachfolgenden radioaktiven Zerfall $^{111}\text{Pd} \xrightarrow{\beta^-} ^{111}\text{Ag} (7.5\text{d}) \xrightarrow{\beta^-} ^{111}\text{Cd}$ zur korrelierten Erzeugung von Sondenkernen ^{111}Cd ($5/2^+$, 247keV, 84ns) und einzelnen Punktdefekten, die lokalisiert zur Sonde eingefroren werden. Für die Defektproduktion steht aus dem γ -Zerfall des hochenergetischen ^{111}Pd -Einfangzustands (5.76MeV) eine Sondenrückstoßenergie von $E_{r,\text{max}} \leq 160\text{eV}$ ($\bar{E}_r \approx 100\text{eV}$) zur Verfügung. Aufgrund der Schwellenenergie $E_{d,\text{min}} = 34(2)\text{eV}$, die minimal zur Bildung eines stabilen Frenkeldefekts im Palladium nötig ist, werden bevorzugt einzelne Punktdefekte erzeugt.

Die Messungen an einer bei 4.6K bestrahlten Polykristallprobe zeigten für einen Bruchteil $f = 19(1)\%$ der Sondenkerne eine diskrete Störung mit einer Quadrupolkopplungsfrequenz von

$$\frac{e^2 Q q}{h} = 86.5 (1.5) \text{ MHz}$$

Für die restlichen Sonden wurde eine schwache Störung entsprechend einer breiten Frequenzverteilung um Null ($\delta \approx 2\text{MHz}$) festgestellt.

Durch isochrone Probestemperung wurde das Ausheilverhalten der diskreten Sondenstörung untersucht. Hierbei konnte eine teilweise Erholung ($\Delta f/f = 0.25(5)$) im Bereich der Erholungsstufe II (60K - 250K) und ein vollständiges Ausheilen in Stufe III (250K - 430K) beobachtet werden.

Aufgrund dieses Verhaltens kann der für die diskrete Sondenstörung verantwortliche Defekt als Leerstelle interpretiert werden. Diese Zuordnung wurde durch eine entsprechende DPAC-Messung an einem bei 4.6K bestrahlten ^{110}Pd - Einkristall überprüft. Hier folgt aus der Spektrenform, daß der Einzeldefekt relativ zur Sonde in $\langle 110 \rangle$ - Richtung liegt. Da Zwischengitteratome sehr wahrscheinlich als $\langle 100 \rangle$ - Hanteln vorliegen würden /1-5/, bestätigt diese Messung die Interpretation des sondennahen Defekts als Einzelleerstelle auf dem nächsten Nachbarplatz zur Sonde.

Die gefundene schwache Störung wird auf Defekte in der weiteren Sondenumgebung zurückgeführt. Da sie erst bei wesentlich höherer Temperatur vollständig ausheilt, ist sie hochstabilen Defekten, vermutlich Leerstellenagglomeraten, zuzuordnen.

Die Meßergebnisse und ihre Deutungen sind in guter Übereinstimmung mit den in dieser Arbeit diskutierten Vorstellungen über den Verlagerungsprozeß und die Ausbildung von Stoßfolgen im Gitter. Sie bestätigen weitgehend Computersimulationen, die für fcc - Gitter am Beispiel Kupfer durchgeführt wurden /6/.

DPAD - Untersuchungen am gleichen Sonde-Matrix-System, die nach einer (α, n) -Reaktion mit hohem Sondenkernrückstoß (ca. 1MeV) durchgeführt wurden, zeigen die gleiche defektbedingte diskrete Störfrequenz mit wesentlich kleinerer Amplitude /7/. Aufgrund der Ergebnisse der vorliegenden Arbeit ist es sehr wahrscheinlich, daß es sich hier um den gleichen Defekt - eine Leerstelle - handelt.

1. Einleitung

Die Eigenschaftsänderungen von Kristallen durch die Einwirkung hochenergetischer Strahlung bei hoher Bestrahlungsdosis spielen für die Auswahl geeigneter Materialien für den Reaktorbau eine wesentliche Rolle. Aus diesem Anstoß für die Erforschung von Strahlenschäden entwickelte sich neben dem rein technologischen Interesse sehr bald eine breite Grundlagenforschung, um zunächst die Elementarprozesse bei der Strahlenschädigung zu studieren.

Der im Festkörper durch Bestrahlung mit energiereichen Teilchen erzeugte einfachste Defekt ist ein Frenkelpaar, bestehend aus einer Leerstelle und einem Zwischengitteratom. Die Reaktionen der Einzeldefekte untereinander und ihre Umbildung zu komplizierten Defektstrukturen wurden in weiten Konzentrationsbereichen sowohl mit makroskopischen Methoden (z.B. Messung des elektrischen Widerstandes) wie auch mit mikroskopischen Methoden (z.B. Röntgen- und Neutronenstreuung, Channeling) untersucht.

Seit einigen Jahren werden in zunehmendem Maße auch die Meßmethoden der Hyperfeinphysik (z.B. Mößbauereffekt, DPAD und DPAC⁺) zur Untersuchung von Gitterdefekten eingesetzt. Durch diese Methoden erhält man eine Information über die Fehlstellenkonfiguration in einer mikroskopischen Umgebung von radioaktiven Sondenkernen. Darüberhinaus kann auch die durch die Sondenkernlebensdauer gegebene mikroskopische Zeitstruktur für das Studium der Dynamik von Defekten eingesetzt werden.

Bringt man die Sonden über eine Kernreaktion oder durch Ionenimplantation mit einem hohen Rückstoß in den zu untersuchenden Festkörper ein, so ist damit unausweichlich eine starke Schädigung des Gitters verbunden. Diese führt im all-

⁺ DPAD : Time-Differential Perturbed Angular Distribution
DPAC : Time-Differential Perturbed Angular Correlation

gemeinen zu elektrischen Feldgradienten am Ort des Sondenatoms. Wegen der korrelierten Erzeugung von Sonden und Defekten können auch Untersuchungen der Eigenschaften ungestörter Festkörper wesentlich durch defektbedingte Quadrupolwechselwirkungen erschwert werden. Aufgrund der temperaturabhängigen Beweglichkeit der Defekte läßt sich diese Störkomponente bei in-beam-Messungen (DPAD) nicht beliebig ausschalten/8-10/. Mit einem primären Einsatz der Kernsonden zur Untersuchung von Gitterfehlstellen wird daher gleichzeitig ein unmittelbares Eigeninteresse für die Messungen der Hyperfeinwechselwirkungen mit diesen Methoden verfolgt.

Um zu einem besseren Verständnis für die komplizierten Defektstrukturen nach hochenergetischen Kernreaktionen zu gelangen, ist es wichtig, zunächst die Stärke der Wechselwirkung der Sonden mit einzelnen einfachen Defekten zu kennen, um dann aus deren Reaktionen oder ihrer Lage bezüglich der Sonden auf die Defektart zu schließen.

Mit diesem Ziel werden in den Experimenten der vorliegenden Arbeit durch eine thermische Neutroneneinfangreaktion im kubischen Palladiumgitter korreliert zur Sonde ^{111}Cd vorzugsweise einzelne Punktdefekte in der unmittelbaren Sondenumgebung durch "wohldosierten" γ - Rückstoß erzeugt. Diese werden über die elektrische Quadrupolwechselwirkung durch DPAC - Messungen im Polykristall und im Einkristall nachgewiesen.

Einführend wird die Theorie der Meßmethode und der beobachteten Quadrupolwechselwirkung dargestellt und die Aussagefähigkeit einer DPAC - Messung bei der Untersuchung von Defekten behandelt. Neben der Darstellung charakteristischer DPAC - Störfunktionen für unterschiedliche Defektanordnungen in Polykristallen wird die Möglichkeit der Unterscheidung zwischen verschiedenen Defektarten an zwei typischen Defektlagen im Einkristall demonstriert und auf die entsprechend durchgeführten Messungen angewendet. Für die niederenergetischen Stoßprozesse im Gitter werden theoretische Ansätze

und Computersimulationen diskutiert und die Auswirkungen der zu erwartenden Defektanordnungen auf die DPAC - Messung beschrieben. Eine Deutung der beobachteten Fehlstellen erfolgt unter anderem über ihr Ausheilverhalten. In einem Vergleich mit anderen defektspezifischen Untersuchungen wird schließlich geprüft, in welchem Rahmen die Ergebnisse und Deutungen übertragbar sind, und welchen Beitrag sie zum Verständnis des Strahlenschadens nach hochenergetischen Kernreaktionen leisten können.

2. Grundlagen

2.1 Der elektrische Feldgradient (EFG)

Der elektrische Feldgradient ist ein symmetrischer Tensor 2. Stufe, dessen Elemente durch die zweiten Ableitungen des elektrischen Potentials dargestellt werden.

$$(1) \quad eq_{x_i x_j} = v_{x_i x_j} = \frac{\delta^2 v}{\delta x_i \delta x_j}$$

Wegen der Laplace-Gleichung ist der EFG-Tensor spurlos.

$$(2) \quad \sum_i v_{x_i x_i} = 0$$

Durch geeignete Wahl des Koordinatensystems kann der Tensor diagonalisiert werden.

$$(3) \quad \frac{\delta^2 v}{\delta x_i \delta x_j} = 0 \quad \text{für } x_i \neq x_j$$

Damit erhält man im Hauptachsensystem mit $x_{i,j} = x, y, z$ die Tensorkomponenten v_{xx} , v_{yy} und v_{zz} . Der EFG kann in dieser Darstellung durch zwei Parameter beschrieben werden.

v_{zz} : Die dem Betrage nach größte EFG-Hauptkomponente in der als Vorzugsachse gewählten z-Achse.

$$(4) \quad \eta = \frac{v_{xx} - v_{yy}}{v_{zz}} : \quad \text{Asymmetrieparameter}$$

Hierbei gilt für den Asymmetrieparameter η bei entspre-

chender Vereinbarung für die Tensor-Hauptachsen:

$$(5) \quad \left| v_{xx} \right| \leq \left| v_{yy} \right| \leq \left| v_{zz} \right| \quad \Rightarrow \quad 0 \leq \eta \leq 1$$

Im Fall der Axialsymmetrie ($\eta = 0$) wird der EFG allein durch $v_{zz} = eq_{zz}$ beschrieben. Im Folgenden wird dieser EFG mit eq_{zz} oder vereinfacht mit eq bezeichnet.

Der elektrische Feldgradient in gestörten kubischen Metallen

Im ungestörten kubischen Gitter eines reinen Metalls ist der EFG an jedem substitutionellen Gitterpunkt aufgrund der kubischen Symmetrie gleich Null.

Der Einbau eines Gitterdefekts (Fremdatom(FA) , Leerstelle(LS) , Zwischengitteratom(ZGA)) führt für einen Punkt außerhalb des Defektzentrums zur Zerstörung der kubischen Gittersymmetrie und damit zu einem Feldgradienten.

Als Beispiel für einen solchen Defekt wird eine Leerstelle(LS) als nächster Nachbar in Richtung $[110]$ zu einem Sondenatom(S) auf einem substitutionellen Gitterplatz gewählt. Durch die beiden senkrecht aufeinander stehenden Ebenen (001) und $(1\bar{1}0)$, an denen LS und S durch Spiegelung in sich selbst übergehen, werden die Hauptachsen des am Ort S wirkenden EFG-Tensors festgelegt. Die zwei Hauptachsen $[001]$ und $[1\bar{1}0]$ stehen senkrecht auf den entsprechenden Spiegelebenen; die 3. Hauptachse $[110]$ steht wegen der Symmetrie des Tensors senkrecht auf der ersten und zweiten Hauptachse. Sie fällt mit der Verbindungslinie zwischen der Sonde S und dem Störzentrum LS zusammen und kennzeichnet damit die Lage der EFG - Hauptkomponente eq_{zz} . Obwohl wegen der Zweizähligkeit der $[110]$ - Achse prinzipiell eine Asymmetrie ($\eta \neq 0$) des EFG zugelassen ist, kann hier ein axialsymmetrischer Feldgradient angenommen werden. Beschreibt man den Stör-

einfluß dieser sondenbenachbarten Leerstelle näherungsweise durch eine Punktladung, so ergibt sich eine Ladungsverteilung, die axialsymmetrisch um die Verbindungslinie Sondenatom - Leerstelle ist. Aufgrund der geringen Gitterverzerrung durch eine Leerstelle bleibt diese Symmetrie im wesentlichen erhalten, so daß annähernd mit einem axialsymmetrischen EFG gerechnet werden kann. Dieses wird durch die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit gestützt.

Ähnliche Überlegungen gelten für die elektrischen Feldgradienten durch Zwischengitteratome und Fremdatome als Störungen der kubischen Gittersymmetrie, jedoch spielen insbesondere für das ZGA neben der reinen Ladungsstörung (valence effect) die Geometriestörungen (size effect) durch Verzerrungen des Gitters eine größere Rolle /11/. Der Asymmetrieparameter wird für Zwischengitteratome folglich stark von ihrer Position im Gitter und der Lage bezüglich der Sondenatome abhängen. Im Falle einer $\langle 100 \rangle$ - Hantellage mit dem Sondenatom als Hantelpartner liegt aus Symmetriegründen ein axialsymmetrischer EFG vor. Für die Feldgradienten von Au- bzw. Ag- Fremdatomen als sondenbenachbarten Einzeldefekten in einer Ag- bzw. Au-Matrix konnten ebenfalls keine Abweichungen von der Axialsymmetrie festgestellt werden /47/. Der Betrag der dort gemessenen EFG entspricht etwa einem Viertel des Wertes, der in dieser Arbeit für eine Leerstelle in Palladium gefunden wird.

Zur Berechnung von defektinduzierten elektrischen Feldgradienten gibt es bisher keine zufriedenstellende Theorie. Die von Kohn und Vosko /12/ auf der Grundlage des Friedel-Modells /13/ für Fremdatome entwickelten Ansätze ergeben für den EFG eine mit dem Abstand r oszillierende Funktion, die mit r^{-3} geschwächt wird. Ein Vergleich mit NMR-Experimenten für verschiedene Fremdatome in Kupfer von Schnakenberg und Schumacher /14/ zeigt jedoch, daß diese Rechnungen auf Störungen in der nächsten Nachbarschaft der Sonden nicht anwendbar sind.

2.2 Die Meßmethode

Zeitdifferentielle Beobachtung der gestörten γ - γ -Winkelkorrelation (DPAC)

Die γ - γ -Winkelkorrelation und der Störeinfluß durch kernäußere Felder soll hier in Anlehnung an die ausführliche Behandlung von Frauenfelder und Steffen / 15 / für die Anwendungsfälle in dieser Arbeit skizziert werden. Die Theorie wird dabei in z.T. groben Schritten aus der allgemeinen Darstellung der gestörten Winkelkorrelation auf die folgenden speziellen Eigenschaften konzentriert, die für alle in dieser Arbeit durchgeführten Experimente zutreffen.

1. Zeitdifferentielle Beobachtung der
2. statischen
3. elektrischen (Quadrupol-) Wechselwirkung bei
4. Axialsymmetrie der elektrischen Feldgradienten

Darüber hinaus wird eine für die meisten Messungen gültige weitere Spezialisierung vorgenommen:

5. Statistische Verteilung der EFG-Lagen (Polykristall)

Als Ergebnis liefern die Ableitungen Meßgleichungen, die die durchgeführten γ - γ -Koinzidenzmessungen am Einkristall bzw. am Polykristall beschreiben.

Mit der Methode der zeitdifferentiellen Beobachtung der gestörten γ - γ -Winkelkorrelation wird die Richtungs- und Zeitkorrelation zwischen zwei γ -Quanten gemessen, die ein ausgewähltes Sondenkernniveau be- bzw. entvölkern. Die Emissionsrichtung des 2. γ -Quants dieser Kaskade wird durch eine im allgemeinen anisotrope Wahrscheinlichkeitsverteilung beschrieben, deren Orientierung durch die Aussendungsachse des 1. γ -Quants festgelegt ist.

$$(6) \quad W(\theta) = \sum_{\substack{k=0 \\ k \text{ gerade}}}^{k_{\max}} A_k(1) A_k(2) P_k(\cos\theta)$$

Die Anisotropiefaktoren $A_k(1)$, $A_k(2)$ werden durch die Spins der Kernzustände und die Multipolaritäten der γ -Übergänge bestimmt. Die Ordnung k nimmt aus Paritätsgründen nur gerade Werte an und wird durch die Drehimpulsauswahlregeln begrenzt. Die beschriebene γ -Winkelverteilung ist selbst zunächst noch zeitunabhängig. Die Korrelation der γ -Quanten unter jedem festen Winkel θ beinhaltet als Information lediglich die Zerfallswahrscheinlichkeit (Lebensdauer τ) des isomeren Zwischenniveaus.

$$(7) \quad I(\theta, t) = N \exp(-t/\tau) W(\theta)$$

Wirken dagegen äußere Felder als Störung auf die Kernmomente des untersuchten Niveaus, führen diese eine Präzessionsbewegung aus; das entspricht quantenmechanisch einer periodischen Umbesetzung der aufgespaltenen m -Unterzustände des Zwischen-niveaus. Die Kernpräzession wird auf die Wahrscheinlichkeitsverteilung W der γ_2 -Emission in Form einer etwas komplizierten Periodizität übertragen. Entsprechend ist der allgemeine Ausdruck für die gestörte Winkelverteilung (bzw. Winkelkorrelation) als Erweiterung von Gl. 6 zu formulieren.

$$(8) \quad W(\vec{k}_1, \vec{k}_2, t) = 4\pi \sum_{k_1 k_2 N_1 N_2} \left[A_{k_1}(1) A_{k_2}(2) [(2k_1+1)(2k_2+1)]^{-1/2} \right. \\ \left. \times G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t) Y_{k_1}^{N_1}(\theta_1, \varphi_1) Y_{k_2}^{N_2}(\theta_2, \varphi_2) \right]$$

Die Winkelbezeichnungen für die Ausstrahlungsrichtungen $\vec{k}_1$ und $\vec{k}_2$ der beiden γ -Quanten sind der Abb. 2.1 zu entnehmen; die Summationsindizes k_1 und k_2 sind unabhängig davon. Bei bekannten Multipolaritäten (einschließlich Beimischungsstärken)

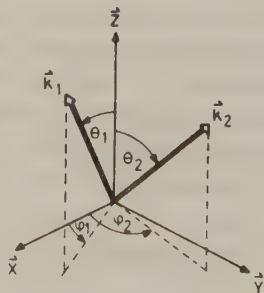


Abb. 2.1 Winkelkoordinaten für die γ -Emissionen

können die Anisotropiekoeffizienten $A_{k_1}(1)$ und $A_{k_2}(2)$ berechnet werden (tabelliert in Ref. /16/). Die Kugelfunktionen sind durch die γ -Nachweisgeometrie (Detektorstellungen) und die Spinfolge bestimmt. Die gesamte Störung wird durch den zeit-

abhängigen Störfaktor $G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t)$ ausgedrückt. In der Definition des Störfaktors

(9)

$$G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t) = \sum_{m_a m_b} \left[(-1)^{2I+m_a+m_b} [(2k_1+1)(2k_2+1)]^{1/2} \begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ m'_a & -m_a & N_1 \end{pmatrix} \right. \\ \left. \times \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ m'_b & -m_b & N_2 \end{pmatrix} \langle m_b | \Lambda(t) | m_a \rangle \langle m'_b | \Lambda(t) | m'_a \rangle \right]$$

wird die Zeitabhängigkeit allein durch den Zeitentwicklungsoperator $\Lambda(t)$ getragen, der die zeitliche Änderung der Dichtematrix unter dem Einfluß der äußeren Störung beschreibt. Der Operator $\Lambda(t)$ gehorcht der Schrödingergleichung

$$(10) \quad \frac{\partial}{\partial t} \Lambda(t) = - \frac{i}{\hbar} K \Lambda(t)$$

Hierin wird die äußere Störung durch den Hamiltonoperator K ausgedrückt. Dieser ist bei statischer Wechselwirkung zeitunabhängig und man erhält für $\Lambda(t)$

$$(11) \quad \Lambda(t) = \exp [-(i/\hbar) K t]$$

Wird das Störfeld axialsymmetrisch und parallel zur z-Achse (siehe Abb. 2.1) angesetzt, die auch als Quantisierungsachse der Eigenfunktionen des Hamiltonoperators K dient, so sind K und $\Lambda(t)$ diagonal in der m -Darstellung

$$(12) \quad \langle m_b | \Lambda(t) | m_a \rangle = \exp[-(i/\hbar) E_m t] \delta_{m m_a} \delta_{m m_b}$$

Die Störfunktion (9) ergibt damit

$$(13) \quad G_{k_1 k_2}^{N N}(t) = [(2k_1+1)(2k_2+1)]^{1/2} \sum_m \begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ m' & -m & N \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ m' & -m & N \end{pmatrix} \\ \times \exp[-(i/\hbar)(E_m - E_{m'})t]$$

Im Fall der elektrischen Quadrupolwechselwirkung des Kernquadrupolmomentes mit einem axialsymmetrischen elektrischen Feldgradienten erhält man durch Niveaufenspaltung in die m -Unterzustände für die Energieeigenwerte

$$(14) \quad E_m = \frac{3m^2 - I(I+1)}{4I(2I-1)\hbar} e^2 Q q_{zz}$$

Darin gilt als Definition für die Energieeinheit

$$(15) \quad \hbar \omega_Q = \frac{e^2 Q q_{zz}}{4I(2I-1)}$$

Mit dieser Definition und den Matrixelementen E_m (14) folgt für den Exponentialfaktor in (13)

$$(16) \quad \exp[-(i/\hbar)(E_m - E_{m'})t] = \exp[-3i(m^2 - m'^2)\omega_Q t]$$

Bei der Messung der reinen Quadrupolwechselwirkung tragen nur die reellen Glieder zur Störung bei. Wird außerdem bei halbzahligem Sondenkernspin

$$(17) \quad 1/2 |m^2 - m'^2| = n$$

$$(18) \quad 6 \omega_Q = \omega_O$$

gesetzt, so kann die Störfunktion vereinfacht dargestellt

werden:

$$(19) \quad G_{k_1 k_2}^{N N}(t) = \sum_n S_{n N}^{k_1 k_2} \cos(n\omega_0 t)$$

wobei für die Frequenzamplituden mit (17) als Summationsbedingung gilt

$$(20) \quad S_{n N}^{k_1 k_2} = [(2k_1+1)(2k_2+1)]^{1/2} \sum_{m, m'} \begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ m' & -m & N \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ m' & -m & N \end{pmatrix}$$

Schließlich lautet die Form der allgemeinen Winkelverteilung (8) mit den speziellen Eigenschaften 1. - 4. von Seite 9

$$(21) \quad W(\vec{k}_1, \vec{k}_2, t) = 4\pi \sum_{k_1 k_2} \sum_n \left[A_{k_1}(1) A_{k_2}(2) S_{n N}^{k_1 k_2} \cos(n\omega_0 t) \right. \\ \left. \times [(2k_1+1)(2k_2+1)]^{-1/2} Y_{k_1}^{N*}(\theta_1, \varphi_1) Y_{k_2}^N(\theta_2, \varphi_2) \right]$$

Für den Spezialfall der Polykristallprobe muß die Störfunktion mit der Bedingung $\theta = \alpha(\vec{k}_1, \vec{k}_2) = \text{const.}$ über alle Kristallrichtungen (Eulerwinkel) integriert werden. Damit entfällt die Abhängigkeit von der Richtungsquantenzahl N . Es treten nur noch Terme $k_1=k_2$ auf, und die Kugelfunktionen werden in Legendrepolynome übergeführt. Man erhält für die Winkelverteilung, wenn $\theta = \alpha(\vec{k}_1, \vec{k}_2)$

$$(22) \quad W(\theta, t) = \sum_k A_k(1) A_k(2) G_{kk}(t) P_k(\cos\theta)$$

Darin ist

$$(23) \quad G_{kk}(t) = \sum_n s_{kn} \cos(n\omega_0 t)$$

mit

$$(24) \quad s_{kn} = \sum_{m, m'} \begin{pmatrix} I & I & k \\ m' & -m & m-m' \end{pmatrix}^2 \quad \text{mit Summationsbedingung (17)}$$

Als Maß für die Stärke der Quadrupolwechselwirkung wird üblicherweise die spinunabhängige Quadrupolkopplungskonstante angegeben. Sie läßt sich aus der kleinsten nichtverschwindenden Frequenz ω_0 mit (18) aus der Definition (15) ausrechnen und beträgt für den in dieser Arbeit interessierenden Sondenkernspin $I = 5/2$:

$$(25) \quad \frac{e^2 Q q}{h} = \frac{10}{3\pi} \omega_0$$

Meßgleichungen

Bei dem durchgeführten γ - γ -Winkelkorrelationsexperiment werden als Meßspektren Koinzidenzereignisse der beobachteten γ - γ -Kaskade in vier Detektoren unter festen Winkeln ($\theta = 90^\circ$ bzw. 180°) aufsummiert. Damit erhält man Intensitätsverteilungen, bei denen der Winkelkorrelationsfunktion $W(\vec{k}_1, \vec{k}_2, t)$ eine Exponentialfunktion der Sondenkern-Lebensdauer überlagert ist.

$$(26) \quad I(\vec{k}_1, \vec{k}_2, t) = N \exp(-t/\tau) W(\vec{k}_1, \vec{k}_2, t)$$

Polykristallmessungen

Für die Beschreibung der Polykristallmessung gilt grundsätzlich die Winkelkorrelation nach (22) mit (23) als Störfunktion. Durch die spezielle Eigenschaft der hier benutzten γ - γ -Kaskade (siehe Kap. 3.2, Seite 24) tragen nur Terme mit $k=2$ bei.

$$(27) \quad W(\theta, t) = 1 + A_{22} G_{22}(t) P_2(\cos\theta)$$

Die einfache Störfunktion für den vorliegenden Fall $I=5/2$,

$$(28) \quad G_{22}(t) = \sum_{n=0}^3 s_{2n} \cos(n\omega_0 t)$$

die eine Störung mit einem eindeutigen elektrischen Feldgradienten (EFG) beschreibt, kann in dieser Form nicht unbedingt für die Gesamtheit aller Sondenkerne angenommen werden. Aus festkörperphysikalischen Gründen ist es sinnvoll, Untergruppen von Sondenkernen zuzulassen, die jeweils unterschiedlichen Störungen durch verschiedene EFG ausgesetzt sind.

(29)

$$G_{22}(t) = f'G_{22}'(t) + f''G_{22}''(t) + \dots + (1-f'-f''-\dots-f^{i-1}) G_{22}^i(t)$$

Darin sind die $G_{22}'(t)$, $G_{22}''(t)$... $G_{22}^i(t)$ modifizierte Störfunktionen der Gl. (28). Eine Auswahl sinnvoller Modifikationen wird in Kap. 2.3, Seite 19, behandelt.

Einkristallmessungen

Für die Meßgleichung bei Einkristallexperimenten ist von der allgemeineren Winkelkorrelation nach (21) auszugehen. Da hier auch Interferenzterme $k_1 \neq k_2$ vorkommen und der $A_4(2)$ -Koeffizient der benutzten γ - γ -Kaskade nicht vernachlässigbar ist (siehe Kap. 3.2, Seite 23), tragen die Terme A_{22} und A_{24} zur Winkelkorrelation bei. Für $I=5/2$ gilt:

$$(30) \quad W(\vec{k}_1, \vec{k}_2, t) =$$

$$1 + 4\pi A_{22} \sum_{n=0}^3 \sum_N S_{nN}^{22} \cos(n\omega_0 t) \frac{1}{5} Y_2^{N*}(\theta_1, \varphi_1) Y_2^N(\theta_2, \varphi_2) \\ + 4\pi A_{24} \sum_{n=0}^3 \sum_N S_{nN}^{24} \cos(n\omega_0 t) \frac{1}{\sqrt{45}} Y_2^{N*}(\theta_1, \varphi_1) Y_4^N(\theta_2, \varphi_2)$$

Im kubischen Einkristall ist die Richtung des elektrischen Feldgradienten (EFG) nicht eindeutig durch die Kristallorientierung festgelegt; denn die Existenz eines EFG ist durch Gitterdefekte begründet. Für diese gibt es mehrere mögliche Lagen ($i = 1 \dots p$), die je nach Beobachtungsrichtung

- besonders für Kristallachsen hoher Symmetrie - teilweise äquivalent sind. Entsprechend muß für die Winkelkorrelation $W(\vec{k}_1, \vec{k}_2, t)$ über diese p Lagen gemittelt werden. Dieser Weg führt zur Bildung von sog. "effektiven" Fourierkoeffizienten

$$(31) \quad S_n^{\text{eff}} = \frac{4\pi}{p} \sum_{i=1}^p \left[\sum_N S_{nN}^{22} \frac{1}{5} Y_2^{N*}(\theta_1^i, \varphi_1^i) Y_2^N(\theta_2^i, \varphi_2^i) + \frac{A_{24}}{A_{22}} \sum_N S_{nN}^{24} \sqrt{\frac{1}{45}} Y_2^{N*}(\theta_1^i, \varphi_1^i) Y_4^N(\theta_2^i, \varphi_2^i) \right]$$

mit der Normierung: (32) $\sum_n S_n^{\text{eff}} = P_2(\cos\theta)$

Hier wird die Lage der Detektoren jeweils im Hauptachsensystem des EFG-Tensors angegeben. Mit den so definierten Fourierkoeffizienten erhält man die für die Auswertung günstige Darstellung der Winkelkorrelationsfunktion

$$(33) \quad W(\vec{k}_1, \vec{k}_2, t) = 1 + A_{22} \sum_{n=0}^3 S_n^{\text{eff}} \cos(n\omega_0 t)$$

2.3 Aussagefähigkeit der DPAC bei Defektuntersuchungen

Die mikroskopische Meßeigenschaft

Als Abgrenzung zu den konventionellen makroskopischen Methoden zur Untersuchung von Defekten (z.B. Messung des elektrischen Widerstandes) ist die DPAC/DPAD-Methode gemeinsam mit dem Mößbauereffekt in die Gruppe der mikroskopischen Meßmethoden einzureihen. Die Vorteile liegen vor allem in der hohen Nachweisempfindlichkeit, d.h. in der extremen Verdünnung der Sonden in der zu untersuchenden Matrix. Wegen der kurzen Reichweite der mit diesen Methoden beobachteten Wechselwirkung werden insbesondere Defekte in der näheren Sondenumgebung erfaßt. Obwohl der Mößbauereffekt ebenfalls die elektrische Quadrupolwechselwirkung nachweisen kann, wurden Einzeldefekte in der unmittelbaren Sondenumgebung bisher hauptsächlich durch die Änderung der Isomerieverschiebung beobachtet. Während die Isomerieverschiebung als skalare Größe keine Richtungsinformation enthält, kann mit Hilfe der Quadrupolwechselwirkung auch die Richtung eines defektbedingten elektrischen Feldgradienten (EFG) gemessen werden.

Die Lokalisierung von Defekten in der unmittelbaren Nachbarschaft des Sondenkerns kann dadurch gegeben sein, daß beide bei einer Bestrahlung korreliert erzeugt werden /7, 17-21, diese Arbeit/, oder daß die Sonde als Fremdatom im Festkörper ein Einfangzentrum für anders erzeugte Defekte bildet (Abschrecken, unkorrelierte Strahlenschäden) /22-26/.

Damit haben die mikroskopischen Methoden die Eigenschaft, daß aufgrund des Defekterzeugungsprozesses sich meist nur ein bestimmter Defekttyp in der näheren Umgebung befindet und andere Defekte sich dem Nachweis entziehen. Diese Eigenschaft muß nicht als Nachteil gewertet werden, da sie gezielt als methodisch bedingte Möglichkeit zur Separation der Defekte eingesetzt werden kann. Welcher Defekt bevorzugt werden soll, läßt sich durch die Experimentiertechnik weitgehend beeinflussen.

Komplizierte Defektstrukturen, die sich durch gleichzeitige Anwesenheit von verschiedenen Defekten sonst nur schwierig deuten lassen, können auf diese Weise vereinfacht analysiert werden. Man stellt zunächst nur die charakteristischen Merkmale ("Fingerabdrücke") der einzelnen Defekte fest, um sie später in einer Überlagerung mit anderen Defekten wiederzuerkennen.

Als Nachteile der mikroskopischen Methoden sind die längeren Meßzeiten und die Begrenzung im Umfang der zur Verfügung stehenden Sondenkerne anzusehen.

Aussagekraft der DPAC (DPAD)-Störfunktion

Der Nachweis von Defekten mit Hilfe der DPAC (DPAD)-Methode kann über die elektrische Quadrupol-Wechselwirkung mit dem von den Defekten erzeugten EFG erfolgen. Im Interesse einer höheren Nachweisempfindlichkeit ist es dabei zweckmäßig, Defektstrukturen in kubischen Kristallen zu studieren, die nicht schon im ungestörten Gitter einen EFG aufweisen.

Die gesamte Information über die Störung der Sondenumgebung liefert die DPAC (DPAD) über die Störfunktion $G(t)$. Dabei setzt sich die Gesamtstörfunktion im allgemeinen aus einzelnen modifizierten Störkomponenten zusammen (siehe Gl. 29 in Kap. 2.2, Seite 15). In einer Übersicht in Abb. 2.2 sind die grundlegenden Typen der Störfunktionen $G_{22}(t)$, für $I=5/2$ und statische Wechselwirkung in einem Polykristall gezeigt. Für die dort auftretenden EFG-Verteilungen werden üblicherweise Lorentz- oder Gaußverteilungen angesetzt. Die Fouriertransformation der entsprechenden Verteilungen für die Wechselwirkungsfrequenz ω führt in der zeitdifferentiellen Störfunktion zu exponentiellen Dämpfungsfaktoren:

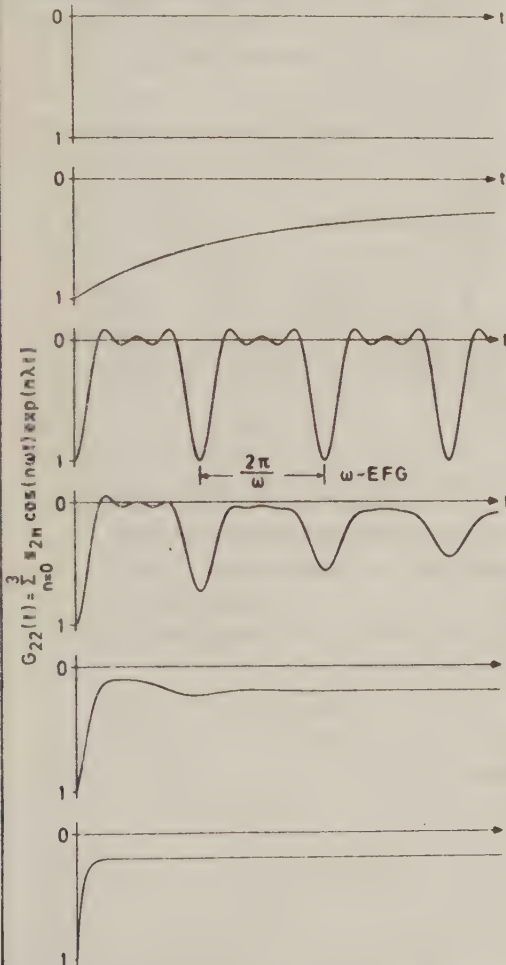
für Lorentzverteilung:

$$(34) \quad G_{22}(t) = \sum_{n=0}^3 s_{2n} \cos(n\omega_0 t) \exp(-n\delta_L t)$$

Abb. 2.2 Charakteristische
D P A C - Störfunktionen $G_{22}(t)$ für
verschiedene statische Verhältnisse
im Kristallgitter
($I = 5/2$, Polykristall)

Interpretation

$f=100\%$ der Sondenkerne
im kubischen Gitter
sehen:



$EFG = 0$
ungestörte kubische
Umgebung

Verteilung um
 $EFG \approx 0$

Einzeldefekte u. Defekt-
agglomerate in >2.-nächster
Nachbarschaft.

eindeutigen
 $EFG \neq 0$

gleichartige Einzeldefekte
im allg. in nächster Nach-
barschaft.

Verteilung um
 $EFG \neq 0$

verschiedene ähnliche Defekt-
konfigurationen in 1.-3.-
nächster Nachbarschaft.

breite Verteilung um
 $EFG \neq 0$

mehrere stark unterschied-
liche Defekte , Mehrfach-
defekte (Cluster).

stark ausgeschmierte
 EFG - Verteilung

komplexe Defektstruktur
(Grenze d. Meßmethode)

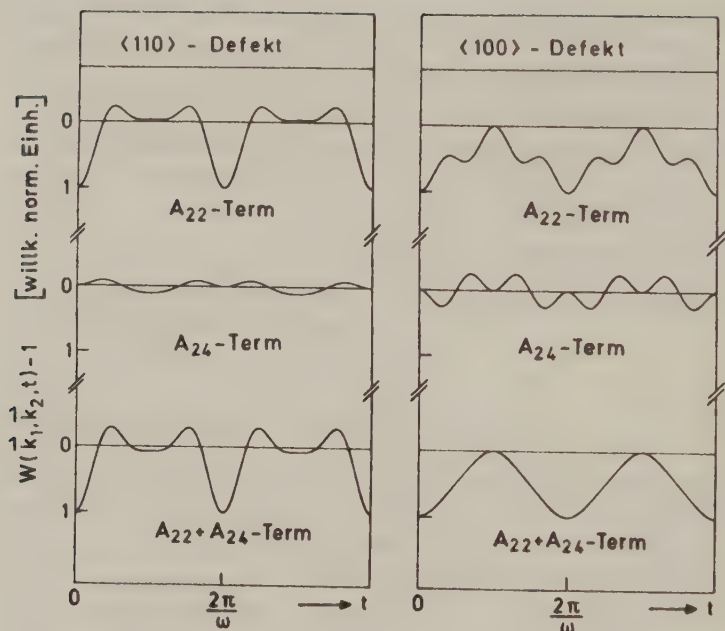


Abb. 2.3 Theoretische DPAC - Winkelkorrelationsfunktionen im Einkristall zur Unterscheidung der Defektlagen $\langle 110 \rangle$ und $\langle 100 \rangle$ bezüglich des Sondenatoms im kubisch flächenzentrierten Gitter (Beobachtungsrichtung : $\langle 100 \rangle$). In dem hier dargestellten Fall für eine Messung an einem γ^+ - Übergang $I = 5/2 \longrightarrow I' = 1/2$ gilt: $A_{22} / A_{24} = 0.866$; die gezeigten Winkelkorrelationsfunktionen sind auf $A_{22} = 1$ normiert.

für Gaußverteilung:

$$(35) \quad G_{22}(t) = \sum_{n=0}^3 s_{2n} \cos(n\omega_0 t) \exp\left(-\frac{1}{2}(n\delta_G t)^2\right)$$

Durch eine Analyse der Meßspektren mit den Komponenten aus Abb. 2.2 kann also eine Aussage über die Defektstruktur (Einzeldefekt oder Defektkomplex) gemacht werden. Der Defektyp, Leerstelle oder Zwischengitteratom, kann meist erst in Verbindung mit dem Mechanismus der Defekterzeugung, an Hand der Temperatur für die Defektausheilung oder durch eine Messung am Einkristall bestimmt werden. Im Einkristall kann man die Lage des Defekts bezüglich der Sonde feststellen und erhält damit eine wichtige Information für seine Identifizierung. In Abb. 2.3 sind die charakteristischen Winkelkorrelationsfunktionen für Einzeldefekte mit der EFG-Hauptachse in $\langle 100 \rangle$ - und $\langle 110 \rangle$ -Richtung gegenübergestellt. Diese Darstellung gilt für die Beobachtung in den $\langle 100 \rangle$ -Kristallrichtungen. Sie verdeutlicht auch die für verschiedene Geometrien sehr unterschiedliche Stärke des Einflusses eines A_{24} -Anteils an der Gesamtstörung. Durch die Wahl der Kristallorientierung gegen das Beobachtungssystem läßt sich die Unterscheidungskraft zwischen verschiedenen Defektlagen somit optimieren.

3. Die DPAC-Messung nach $^{110}\text{Pd}(n,\gamma)$ -Reaktion

3.1 Korrelierte Erzeugung von Sonden und sondenlokalisierten Defekten

Über die thermische Neutroneneinfangreaktion $^{110}\text{Pd}(n,\gamma)^{111}\text{Pd}$ und nachfolgenden β^- -Zerfall wird die Mutteraktivität ^{111}Ag ($T_{1/2}=7.5\text{ d}$) erzeugt. Diese bevölkert das 342 keV-Ausgangsniveau der betrachteten γ - γ -Kaskade 95 keV - 247 keV im Sondenkern ^{111}Cd (Abb. 3.1).

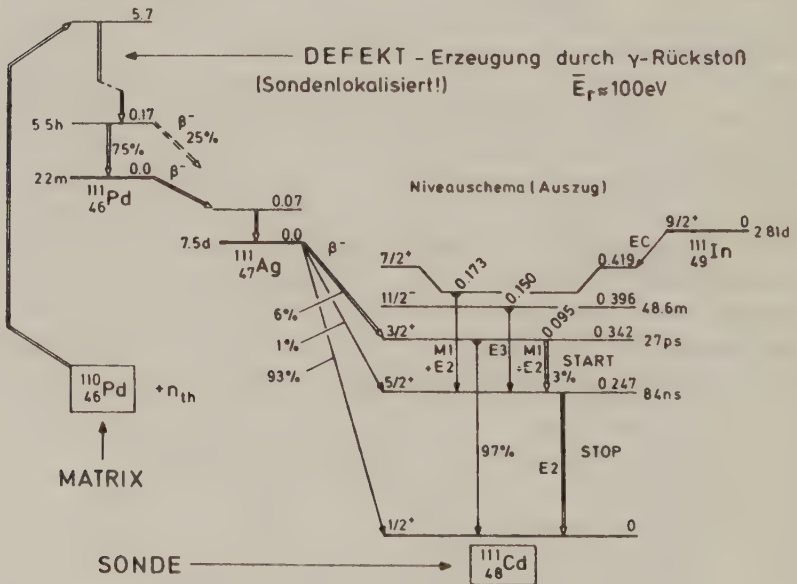


Abb. 3.1 Korrelierte Erzeugung von Sonden und sondenlokalisierten Defekten durch Einfang thermischer Neutronen in ^{110}Pd . Der Weg der Bevölkering und der Zerfälle, die zur betrachteten γ - γ -Kaskade führen, ist durch Doppelpfeile gekennzeichnet.

Beim Zerfall der hochangeregten ^{111}Pd -Kerne (5.76 MeV) erhalten diese einen γ -Rückstoß in der Größenordnung der für Pd-Atome notwendigen Verlagerungsenergie und führen damit zu einem "wohldosierten" Strahlenschaden. Diese korreliert zur (n,γ) -Kernreaktion erzeugten Einzeldefekte werden im Falle einer Tieftemperatur-Neutronenbestrahlung im Bereich der ^{111}Pd -Kerne eingefroren und befinden sich damit lokalisiert zur zukünftigen Sonde ^{111}Cd .

3.2 Kernphysikalische Eigenschaften der Meßsonde

$$\underline{^{111}\text{Cd} (^{111}\text{Ag}, T_{1/2} = 7.5 \text{ d})}$$

Gemessen an der Gesamtaktivität der Probe wird die betrachtete γ - γ -Meßkaskade mit einer relativ sehr geringen Intensität durchlaufen. Bereits die Einfütterung in das obere 342 keV ($3/2^+$, 27 ps)-Niveau der Kaskade erfolgt mit nur 6 % der gesamten ^{111}Ag -Mutteraktivität. Hiervon zerfallen wiederum nur 3 % der Kerne zum eigentlichen Sondenniveau 247 keV ($5/2^+$, 84 ns). Aus meßtechnischer Sicht ist diese Kaskade daher sicher nicht in die Klasse der günstigen Winkelkorrelationsfälle einzuordnen.

Der Zerfall des Sondenniveaus 247 keV zum Grundzustand ist als reiner E2-Übergang bekannt. Die Anisotropiekoeffizienten für die Winkelkorrelationsfunktion lassen sich damit vorhersagen /16/.

$$A_2(2) = -0.5345 \quad A_4(2) = -0.6172$$

Für den ersten Übergang (95 keV), der das Sondenniveau bevölkert, sind experimentelle Daten über die Strahlungsart nicht bekannt. Jedoch sollte es sich entsprechend der Spins und Paritäten um einen M1-Übergang mit allenfalls geringer E2-Beimischung handeln. Die Höhe dieser Beimischung kann aus der

Lebensdauer des 342 keV-Niveaus zu $E2 < 6\%$ abgeschätzt werden. Den gleichen Wert erhält man aus den Ergebnissen dieser Arbeit, wenn die gemessene effektive Anisotropie A_{22} unter Berücksichtigung der Raumwinkelkorrektur für den Detektorabstand als theoretisches A_{22} angesetzt wird. Entsprechend erhält man mit dieser E2-Beimischung als Abschätzung für die Anisotropiekoeffizienten des 1. Übergangs

$$A_2(1) = 0.37(6) \quad A_4(1) < 0.003$$

Der A_4 -Term des ersten Übergangs liefert also einen vernachlässigbaren Beitrag zu den Anisotropiekoeffizienten. Damit müssen folgende Anteile berücksichtigt werden.

Für die Polykristallmessungen: nur A_{22} -Term

Für die Einkristallmessung: A_{22} - und A_{24} -Term

im Verhältnis $(A_{22}/A_{24})_{th} = 0.866$ (theoretisch)

bzw. für die effektiven Anisotropien nach Raumwinkelkorrektur auf den im Experiment verwendeten Detektorabstand 7 cm

$$(A_{22}/A_{24})_{eff} = 0.955 \text{ (effektiv)}$$

3.3 Eigenschaften und Kennzeichen der Defekterzeugung

Allgemeines

Die sondenkorrelierte Erzeugung von Defekten ist zunächst eine Eigenschaft der Kernreaktionen schlechthin; diesbezüglich nimmt die Neutroneneinfangreaktion keine Sonderstellung ein. Gerade im Hinblick auf die relative Kurzsichtigkeit der Meßsonden (≤ 3 Gitterabstände) stellen sich jedoch die grundsätzlichen Fragen

- 1) Sind die sondenkorreliert erzeugten Defekte auch sondenlokalisiert?
- 2) Wird durch die "Sondenkurzsichtigkeit" in Verbindung mit dem Mechanismus der Defekterzeugung eine bestimmte Defektart bevorzugt?
- 3) Werden überhaupt nur Einzeldefekte beobachtet, oder hat man es auch mikroskopisch mit einer komplexen Defektstruktur zu tun?

Die Antwort auf diese Fragen ist eng verknüpft mit der aus der Kernreaktion zur Verfügung stehenden Rückstoßenergie und der minimal zur Verlagerung eines Atomes notwendigen Energie. Um ein stabiles Zwischengitteratom zu erzeugen, muß eine Schwellenenergie E_d aufgewendet werden, die aufgrund der Gitterstruktur von der Verlagerungsrichtung abhängt. Folglich existiert eine minimale Schwellenenergie $E_{d,min}$ (10-40 eV / Tab.3.1), die mindestens zur Verlagerung eines Atomes nötig ist und eine maximale Schwellenenergie $E_{d,max}$ (≤ 100 eV), oberhalb der eine Mehrfachdefektproduktion erfolgt.

Material	Z	$E_{d,min}$ [eV]
C	6	33
Mg	12	10
Al	13	16
Si	14	22
Ti	22	19.2
V	23	25
Fe	26	20
Co	27	22
Ni	28	23
Cu	29	19
Zn	30	13.5
Ge	32	15.5
Zr	40	21
Nb	41	28
Mo	42	34
Pd	46	34
Ag	47	24
Cd	48	19
In	49	10.5
Sn(∞)	50	12
Ta	73	32
W	74	40
Pt	78	34
Au	79	34.5
Pb	82	12.6

Tab.3.1 Übersicht über experimentell bestimmte minimale Verlagerungsenergien (Ref. 30)

Während bei Kernreaktionen mit hochenergetischen geladenen Teilchen Rückstoßenergien von einigen 100 keV auftreten, und damit zwangsläufig große Defektkaskaden erzeugt werden, liegen die γ -Rückstoßenergien nach Neutroneneinfangreaktionen nur in der Größenordnung 100 eV. Das bedeutet eine hohe Begünstigung der Einfachdefektproduktion gegenüber der Mehrfachdefektproduktion; Defektkaskaden sind praktisch ausgeschlossen. Die (n, γ) -Reaktion als "sanfte" Defekterzeugungsmethode sollte daher gegenüber anderen Kernreaktionen zu relativ einfachen Defekten bzw. Defektkonfigurationen in der Sondenumgebung führen. Sie bietet damit insbesondere die Möglichkeit, sich an den in vielfältiger Form durchgeführten Computersimulationen von Stoßprozessen / 6, 27 / zu orientieren oder diese ggf. experimentell zu überprüfen.

Der Verlagerungsprozeß (min. Verlagerungsenergie)

Die Übertragung einer Energie E auf ein Primäratom führt mit einer Wahrscheinlichkeit $P(E)$ zur Verlagerung dieses Atoms. Weiterhin wird durch die Funktion $n(E)$ die mittlere Anzahl von Frenkelpaaren angegeben, die ein Primäratom mit der Energie E erzeugt. Die Verlagerungsfunktion $P(E) n(E)$ erhält man durch energieabhängige Messungen der Schädigungsrate (i.a. durch Widerstandsmessungen nach Elektronenbeschuß). Als minimale Schwellenenergie $E_{d, \min}$ gilt dann die Energie, bei der mit abnehmendem Rückstoß $E_{\max}$ die Schädigungsrate Null wird /28 /. Damit wird die Schwellenenergie durch die Bildung eines stabilen Frenkeldefekts und nicht als die für einen Verlagerungsschritt nötige Energie festgelegt. Das Zwischengitteratom muß einen Mindestabstand von seiner Leerstelle besitzen (in $\langle 110 \rangle$ -Richtung 4 nächste Nachbarabstände / 6 /), um nicht spontan, d.h. athermisch mit dieser zu rekombinieren. In Abb. 3.2 ist die Anisotropie des Volumens für spontane Rekombination dargestellt. In gleicher Weise ergeben auch Maschinenrechnungen von Gibson et al. / 6 / sowie Schädigungs-ratenmessungen von Jung et al. an Einkristallen /29 / eine Richtungsabhängigkeit der Schwellenenergie (Abb. 3.3).

Die Schwellenenergie $E_d(\theta, \phi)$ für eine bestimmte Verlagerungsrichtung wird durch die sog. partielle Verlagerungswahrscheinlichkeit $P(E, \theta, \phi)$ definiert.

$$(36) \quad P(E, \theta, \phi) = \begin{cases} 0 & \text{für } E < E_d(\theta, \phi) \\ 1 & \text{für } E \geq E_d(\theta, \phi) \end{cases}$$

Mögliche Unschärfen der Schwellenenergie durch Gitterschwingungen können bei tiefen Temperaturen vernachlässigt werden.

Abb. 3.2 Stabile (s) und instabile (u) Positionen einer Leerstelle im Bereich eines Zwischengitteratoms. Die gestrichelte Linie kennzeichnet das Instabilitätsvolumen, innerhalb dessen eine spontane Rekombination der Frenkel-partner erfolgt (Ref. 6).

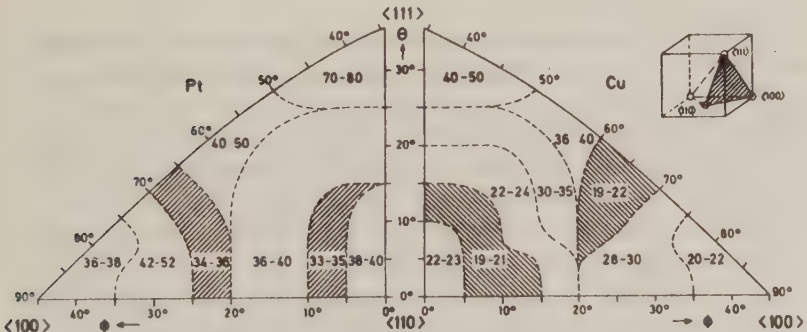


Abb. 3.3 Schwellenenergieprofile für die Verlagerung von Atomen in Platin und Kupfer. Die schraffierten Zonen geben die Bereiche der minimalen Verlagerungsenergien an (Ref. 29).

Folglich werden bei isotroper Rückstoßverteilung auf Primäratome anisotrope Verlagerungen stattfinden. Entsprechend der Schwellenminima (schraffierte Bereiche in Abb. 3.3) erfolgen die Verlagerungen vorzugsweise nahe den dichtest gepackten Gitterrichtungen $\langle 110 \rangle$ und $\langle 100 \rangle$. Die Richtungsabhängigkeit der Schwellenenergie wurde für Palladium bisher nicht gemessen. Die am Polykristall von Jimenez et al. bestimmte min. Verlagerungsenergie $E_{d,min} = 34 \text{ (2) eV /31/}$ stimmt mit dem Wert für Platin überein. Dabei gilt $E_{d,min} = \text{Min}[E_d(\theta, \phi)]$.

Aus dem Vergleich der Ionenradien, Atomvolumen, Gitterparameter etc. darf man damit schließen, daß auch die Richtungsabhängigkeit aus der Pt-Darstellung mit geringen Abweichungen auf das Palladium übertragen werden kann. Auch die Schwellendiagramme von Kupfer und Platin zeigen keine grundsätzlichen Abweichungen der Energieprofile voneinander ($E_d(\text{Pt}) \approx 2E_d(\text{Cu})$). Daher sollte es möglich sein, z.B. auch die Erkenntnisse aus Computersimulationen für Kupfer /6/ qualitativ und teilweise quantitativ auf die Kinematik im Palladium zu übertragen.

Stoßfolgen

Hierbei wird die sekundäre Verlagerung von Atomen betrachtet. Für den Ablauf von Stoßfolgen im Gitter gibt es verschiedene Modelle und Theorien. In allen Modellen werden die Stöße als elastische Zweierstöße behandelt; alle Stöße finden zwischen einem schnell bewegten Atom und einem auf einem regulären Gitterplatz ruhenden Atom statt. Seitz und Harrison /32/ und Snyder und Neufeld /33/ nehmen an, daß der Stoß zwischen einem im Zwischengitter fliegenden Atom und einem im Potentialtopf ruhenden Gitteratom am Rande des Topfes stattfindet. Das stoßende Atom taucht also nicht in den Topf ein und bleibt daher im Zwischengitter. Diese völlig unsymmetrische Behandlung der Stoßpartner verbietet die Möglichkeit eines Ersetzungsstoßes und damit die Anwendung der Theorie auf strahlungsinduzierte Umordnungsprozesse. Dagegen verläßt im

Kinchin-Pease-Modell /34/ das gestoßene Atom seinen Platz mit unverminderter Stoßenergie, wenn es eine Rückstoßenergie von mindestens E_d übertragen bekommt. Bei kleineren Energien kann es den Stoßort effektiv nicht verlassen. Entsprechend kann ein Primäratom der Energie $E > 2 E_d$ weitere Defekte erzeugen.

$$(37) \quad n(E) = \begin{cases} 1 & E < 2 E_d \\ E/2 E_d & E \geq 2 E_d \end{cases} \quad \text{für}$$

(Das Primäratom wird bei $n(E)$ stets mitgezählt)

Zu einem ähnlichen Ergebnis führen Rechnungen von Lehmann /35/. Dort wird das Modell von Seitz et al. dahingehend modifiziert, daß Stöße in beliebiger Höhe des Potentialtopfes zugelassen werden. Dadurch werden auch in jenem Modell Ersetzungsstöße ermöglicht und die berechnete mittlere Anzahl von erzeugten Defekten ist

$$(38) \quad n(E) = \begin{cases} 1 & E_d \leq E < 2 E_d \\ \frac{E + E_d}{2 E_d} & E \geq 2 E_d \end{cases} \quad \text{für}$$

Gegenüber dem Kinchin-Pease-Modell werden kleinere Primärenergien hier besser berücksichtigt.

Für Energien $E > E_d$ erhält man also Stoßfolgen, bei denen durch Ersetzungsstöße nicht nur Energie, sondern Materie transportiert wird. Dieses wiederum bedeutet hier Defekttransport. Innerhalb einer Stoßfolge sind davon aber nicht beide Frenkel-partner, sondern nur das Zwischengitteratom betroffen, welches am Ende der Stoßkette erzeugt wird. Die Reichweite von Stoßfolgen ist entsprechend der partiellen Verlagerungswahrscheinlichkeit richtungsabhängig. Durch die Schwellenminima nach Abb. 3.3 werden wieder die Richtungen nahe $\langle 100 \rangle$ und $\langle 110 \rangle$ favorisiert. Zusätzlich wirkt im Falle nichtzentraler Stoßrichtungen ein Fokussierungseffekt nach Silsbee /36/, der vor allem für die $\langle 110 \rangle$ -Richtung stark ausgeprägt ist. So er-

geben sich unterhalb gewisser Stoßenergiegrenzen selbst bei relativ großen Winkelabweichungen des Primärstoßes von diesen Gitterachsen noch Stoßfolgen in diesen Richtungen. Maschinenrechnungen von Vineyard in Kupfer / 6 / zeigen für Stöße von 40 eV unter 15° zur $\langle 100 \rangle$ -Richtung sowie 22.5° gegen die $\langle 110 \rangle$ -Richtung noch eine Fokussierungsfolge in diesen Richtungen (Abb. 3.4).

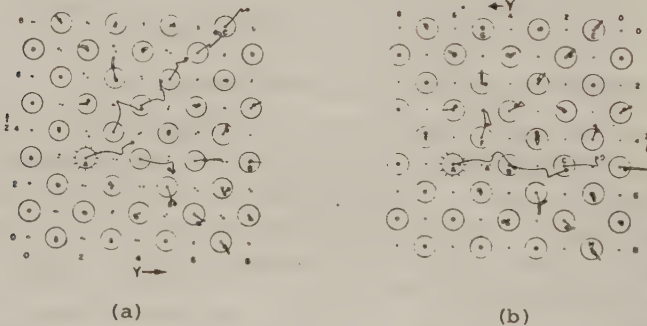


Abb. 3.4 Computersimulationen von Ersetzungsstoßfolgen in Kupfer. Das Primäratom A wird in der $\{100\}$ -Ebene mit einer Energie von 40 eV gestoßen. Stoßrichtung: (a) 22.5° gegen die y-Achse, (b) 15° gegen die y-Achse (Ref. 6).

Stoßfokussierung

Der Fokussierungseffekt kann im einfachsten Fall durch den Stoß harter Kugeln dargestellt werden (Abb. 3.5).

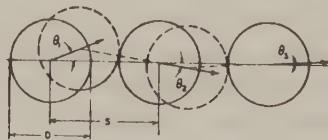


Abb. 3.5 Fokussierungseffekt in einer Stoßkette "harter Kugeln"

Dabei gilt für die aufeinanderfolgenden Stoßwinkel θ_i, θ_{i+1}

$$(39) \quad \theta_{i+1} = \sin^{-1} \left[(S/D) \sin \theta_i \right] - \theta_i$$

für kleine Winkel: (40) $\theta_{i+1} = (S/D - 1) \theta_i$

Definiert man als Fokussierungsparameter

$$(41) \quad \Lambda = S/D - 1$$

so gilt für die Stoßfolgen $\Lambda \leq 1$ fokussierend
 $\Lambda > 1$ defokussierend

Als erste Annäherung an den realistischen Fall des Stoßes von Atomen wird der Harte-Kugel-Durchmesser über den Ansatz eines Anpassungspotentials (Born-Mayer) energieabhängig definiert:

$$(42) \quad V(r) = A e^{-r/a} \quad (43) \quad D = a \ln (2A/E)$$

Mit zunehmender Energie wird der Mindestabstand für die Annäherung der Atome kleiner. Der Durchmesser der "Harten Kugeln" wird also durch den Abstand der Atome bestimmt, bei dem ihre Relativgeschwindigkeit Null wird.

Damit wird auch die Fokussierungseigenschaft (Λ) einer Ersetzungsstoßfolge energieabhängig; entsprechend wird als Fokussierungsenergie E_F die Schwellenenergie definiert, oberhalb der eine Defokussierung eintritt: $E > E_F : \Lambda > 1$. Die mit (43) modifizierte Harte-Kugel-Näherung führt z.B. für Kupfer in $\langle 100 \rangle$ -Richtung zur Defokussierung für $E > E_F = 70$ eV, die tatsächliche Fokussierung ist jedoch schlechter. Durch Einführung eines effektiven Kugeldurchmessers /37/ und Verfeinerungen des Anpassungspotentials erhält man schließlich Fokussierungsparameter bzw. -energien, die mit Computersimulationen von Vineyard et al. recht gut übereinstimmen. Bei diesen Maschinenrechnungen werden die Atomreihen nicht isoliert voneinander betrachtet; außerdem wird eine kontinuierliche Wechselwirkung der Stoßpartner angesetzt. Dadurch wird nicht nur

der Ablenkungswinkel sondern auch die genaue Bahn der Stoßteilchen besser berücksichtigt.

Bei maximalen Startwinkeln $\theta_0 \leq 20^\circ$ gegen die Richtung der initiierten Stoßkette ergeben die Computerrechnungen für Kupfer / 6 /

$$E_F = 30 \text{ eV in } \langle 110 \rangle\text{-Richtung}$$

$$E_F = 40 \text{ eV in } \langle 100 \rangle\text{-Richtung}$$

Die prinzipielle Abhängigkeit der Ergebnisse von Stoßrechnungen in der $\langle 110 \rangle$ -Richtung von der Stoßebene ($\langle 110 \rangle$ ist zweizählige Achse) sollte für Startwinkel $\theta_0 \leq 15^\circ$ sehr klein sein.

Der Energieverlust pro Ersetzungsstoß setzt sich aus dem "Fokussierungsverlust" und dem "Nachbarnverlust" (Energietransfer auf die Atome der Nachbarreihen) zusammen

$$(44) \quad \Delta E_i = -E_i \sin^2 [\theta_i (1 + \Lambda_i)] \quad - \quad \epsilon$$

Fokussierungsverlust Nachbarnverlust

Für Kupfer wird ein Nachbarnverlust angegeben:

$$\epsilon \approx 2/3 \text{ eV in } \langle 110 \rangle \text{ - Richtung } \quad /6,38/$$

$$\epsilon \approx 7 \text{ eV in } \langle 100 \rangle \text{ - Richtung } \quad / 39 /$$

Der 10-fache Verlust in $\langle 100 \rangle$ -Richtung ist durch den engeren 4-Atom-Ring zu erklären, der pro Ersetzungsstoß zu durchdringen ist. Entsprechend höher ist auch in den anderen weniger dicht gepackten Richtungen $\langle 211 \rangle$, $\langle 310 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ der Energieübertrag an die Atome der Nachbarreihen, die wie in der $\langle 100 \rangle$ - Folge transversal ausgelenkt werden.

Folglich unterscheiden sich die maximalen Reichweiten von Ersetzungsstoßfolgen in den einzelnen Gitterrichtungen beträchtlich. Als maximale Stoßzahl in den Stoßfolgen für die beiden

wesentlichen fcc-Gitterachsen wird angegeben:

$$n_{\max} \approx 40 \quad \text{in } \langle 110 \rangle - \text{Richtung} \quad /38/$$

$$n_{\max} \approx 5 \quad \text{in } \langle 100 \rangle - \text{Richtung} \quad /6/$$

Die Stoßfolgen werden mit der Bildung eines Zwischengitteratoms beendet, wenn die Stoßenergie auf die Zwischengitterenergie abgesunken ist. Die Zwischengitterenergie ist maximal in Richtung der $\langle 110 \rangle$ -Geraden und fällt bei Abweichungen von dieser stark ab (bei $\theta=10^\circ$ etwa auf die Hälfte /38/). Entsprechend schwanken die Angaben dieser Energie für den Abbruch einer Ersetzungsstoßfolge in den Rechnungen von Vineyard für Kupfer zwischen 20 eV und 3.5 eV. Eine grobe Abschätzung für den Maximalwert der Zwischengitterenergie in $\langle 110 \rangle$ -Richtung ergibt sich aus der Verlagerungsenergie E_d abzüglich 3-4-facher "Nachbarnverlust"-Energie ϵ , die anfänglich zur Überwindung des spontanen Rekombinationsvolumens aufgewendet werden mußte.

Folgerungen für das Pd(n,γ)-DPAC-Experiment

Für die Verlagerung der Atome im Palladium durch γ-Rückstoß wird die Gültigkeit der grundlegenden Erkenntnisse aus den Berechnungen und Computersimulationen für Kupfer angenommen.

Entsprechend der höchstmöglichen Übergangsenergie ($E_{\gamma, \max} = 5.76 \text{ MeV}$) in der Zerfallskaskade des angeregten ^{111}Pd -Kerns kann auf die Sondenkerne nach Gl. 45

$$(45) \quad E_r = \frac{E_\gamma^2}{2Mc^2}$$

eine maximale Rückstoßenergie von $E_{r, \max} \approx 160 \text{ eV}$ übertragen werden. Für den realistischen Fall des γ-Zerfallspektrums ist auch für die Rückstoßenergie eine Verteilung um einen Mittelwert ($\bar{E}_r \approx 100 \text{ eV}$) zu erwarten. (siehe Diskussion in Kap. 6.4, Seite 84). Eine Zuordnung der Rückstoßenergie E_r zur resultierenden Zerfallsenergie E_γ nach Gl. 45 ist in der Abb. 3.6 dargestellt.

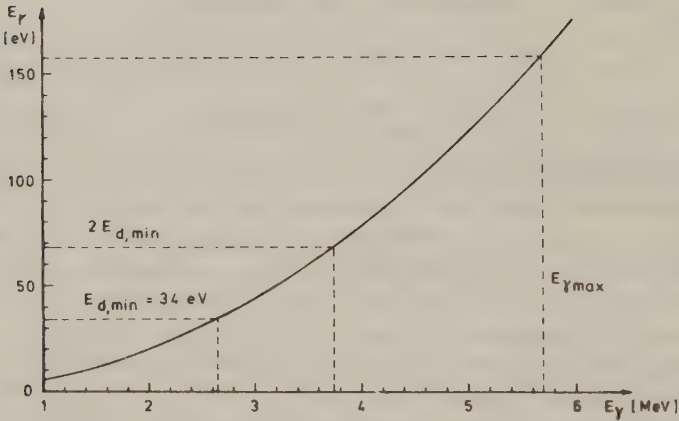


Abb. 3.6 Abhängigkeit der Rückstoßenergie E_r von ^{111}Pd -Atomen von der resultierenden Zerfallsenergie E_γ

Die Gesamtzahl der isotrop verteilten Rückstoßereignisse kann grob in drei Klassen aufgeteilt werden. Diese unterscheiden sich durch den im Einzelfall tatsächlich ablaufenden Stoßprozeß und damit durch die Umgebung, in der das primäre Stoßatom (Sonde) nach dem Stoß zur Ruhe kommt.

i)
$$E_r < E_{d,\min}$$

Es kann kein stabiles Frenkelpaar gebildet werden; das Primäratom fällt auf seinen Gitterplatz zurück und sieht eine ungestörte kubische Umgebung. Die DPAC-Störfunktion für diese Sondenkerne ist $G_{22}(t) = 1$.

ii)
$$E_{d,\min} \leq E_r < \text{Min} (2E_{d,\min}, E_F)$$

Mit der Wahrscheinlichkeit $P(E_r)$ erfolgt eine Sondenatomverlagerung. Entsprechend der für die Verlagerungsrichtungen unterschiedlichen Schwellenenergien wird für $P(E_r)$ eine von $P(E_{d,\min})=0$ ausgehende linear ansteigende oder stufenförmige Funktion angenommen / 48, 40/. In fokussierenden Stoßfolgen

entlang der dicht gepackten Gitterrichtungen sind die erzeugten Frenkelpartner je nach Primärenergie und Startwinkel θ_0 zur Stoßkette weit voneinander entfernt (>10 Gittereinheiten). Die Fokussierungsenergie ist für Palladium höher zu erwarten als für Kupfer; sie nimmt für schwerere Elemente allgemein zu und beträgt z.B. für Silber: $E_F^{<110>}(\text{Ag}) = 87 \text{ eV} / 41\%$. Für die verlagerten Primäratome wird eine einfache gestörte Umgebung angenommen, in der die Sonden ihre eigene Leerstelle auf dem nächsten ($<110>$) oder eventuell auch zweitnächsten ($<100>$) Nachbarplatz sehen. Dieses würde durch eine DPAC-Störfunktion mit einer diskreten Wechselwirkungsfrequenz beschrieben:

$$(46) G_{22}(t) = \sum_{n=0}^3 s_{2n} \cos(n\omega_0^{<hkl>} t) \quad \text{mit } \omega_0^{<hkl>}:$$

$$\omega_0^{<110>} > \omega_0^{<100>}$$

$$\text{iii)} \quad E_r > \text{Min} (E_F, 2E_{d,\text{min}})$$

Für fast-zentrale Stöße ($\theta_0 < 5^\circ$) in den Richtungen $<110>$ und $<100>$ kann mit langreichweitigen Ersetzungsstoßfolgen gerechnet werden. Der Defokussierungseffekt macht sich nur langsam bemerkbar, und nach entsprechend vielen Verlagerungsschritten ist durch Energieverlust die Fokussierungsbedingung wieder erfüllt. Selbst wenn bei höheren Energien eine defokussierende Stoßfolge mit Mehrfachdefektproduktion eingeleitet wird, ist das für den ersten Verlagerungsschritt ohne Bedeutung; das Sondenatom kommt auch dann neben seiner eigenen Leerstelle zur Ruhe. Man erhält in diesen Fällen die gleiche Störfunktion wie bei ii).

Bei sehr hohen Rückstoßenergien und großen Stoßwinkeln kann das Primäratom gleich zu Beginn der Stoßfolge aus dieser ausbrechen und auf einem Zwischengitterplatz landen, der außerhalb des spontanen Rekombinationsvolumens der Leerstelle (am Ursprung des Sondenatoms) liegt. Ebenso sind bei hohen Energien auch Verlagerungen in weniger dicht gepackten Richtungen

$\langle 211 \rangle$, $\langle 310 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ möglich. In beiden letztgenannten Fällen ist mit einer Verteilung von schwachen, d.h. sondenentfernten Störungen zu rechnen.

$$G_{22}(t) = \sum_{n=0}^3 s_{2n} \cos(n\bar{\omega}t) \exp(-n\delta_L t): \text{ Lorentzverteilung}$$

oder

$$G_{22}(t) = \sum_{n=0}^3 s_{2n} \cos(n\bar{\omega}t) \exp(-\frac{1}{2}(n\delta_G t)^2): \text{ Gaußverteilung}$$

mit $\bar{\omega} \approx 0$

4. Experimentelles

4.1 Probenherstellung

Polykristallproben

Isotopenangereichertes ^{110}Pd -Metallpulver (Anreicherungsgrad 97.73 %, chem. Reinheit ≈ 99.5 %) wurde gepreßt und unter Hochvakuum im Elektronenstrahl zu einer Kugel zusammengesmolzen. Diese wurde auf eine Dicke von 0.07 mm kaltgewalzt und ca. 6 h bei 1300°C unter ≈ 760 Torr Argonatmosphäre getempert, um die bei der Kaltverformung erzeugten Versetzungen auszuheilen.

Einkristallprobe

Für die Auswahl eines geeigneten Herstellungsverfahrens der Einkristallprobe galten besondere Randbedingungen und Anforderungen.

1. Hoher Schmelzpunkt (1550°C)

2. Probenmenge:

- a) Ausgangsmenge des Isotopenmaterials ≈ 120 mg
- b) Erforderliche Einkristall-Nettoprobenmenge > 20 mg
(Zur Erreichung der notwendigen Aktivität bei vorgegebenem thermischem Neutronenfluß und vertretbarer Beladungszeit der Tieftemperaturbestrahlungsanlage)

3. Probendicke:

- a) $d > 0.1$ mm - wegen mechanischer Stabilität zur Erhaltung der Einkristallgüte
- b) $d \leq 0.25$ mm - wegen Eigenabsorption der 95 keV-Start- γ -Quanten

4. Kristallorientierung

Kristallachsen mit hoher Symmetrie - möglichst $[100]$ und $[010]$ - sollten unter etwa 45° zur Flächennormalen stehen (wegen Eigenabsorption der 95 keV- γ -Quanten in den beobachtigten Beobachtungsrichtungen $[100]$ und $[010]$).

Diese Bedingungen schließen das Czochralski-Verfahren (Ziehen aus der Schmelze) völlig aus. - Das speziell zum Ziehen von sehr dünnen (< 0.1 mm) Einkristallfolien geeignete Verfahren der Rekristallisation nach Kaltverformung muß neben der mechanischen Empfindlichkeit (3a) vor allem wegen zu kleiner erreichbarer Nettoprobenmenge ausscheiden (2b).

Die Anforderungen an den Einkristall sind am ehesten mit dem Bridgman-Verfahren zu erfüllen, bei dem die Metallschmelze in einem Tiegel durch einen Ofen gezogen wird. Dieses Verfahren wurde für die Herstellung des isotonenangereicherten Palladium-Einkristalls eingesetzt. Als Probenform diente ein Al_2O_3 -Scheibchen ($L \times H \times B = 15 \times 9.5 \times 2.5$ mm³) mit eingesägtem ca. 0.25 mm breitem Mittelschlitz in der L-H-Ebene zur Aufnahme des Schmelzgutes. Das Palladium-Ausgangsmaterial entsprach dem der Polykristallproben; es wurde etwa auf die angegebene Schlitzbreite und -form gewalzt und auf optimale Formfüllung ausgeschnitten. Die Al_2O_3 -Form wurde bei ca. 1650°C ausgeheizt, da-

nach mit dem Probenmaterial bestückt und die beiden noch offenen Schlitzseiten mit ebenfalls ausgeheizten Al_2O_3 -Plättchen gut verschlossen; andernfalls trat das Schmelzgut wegen der Oberflächenspannung gegen die Schwerkraft aus der Form aus. Die Probenform wurde in ein Al_2O_3 -Rohr-Ziehschiffchen geklemmt und horizontal durch den negativen Temperaturgradienten (ca. $500^\circ/\text{cm}$) am Ausgang eines kleinen Rohrofens gezogen (Abb. 4.1). Die Ziehgeschwindigkeit betrug etwa 5 mm/h.

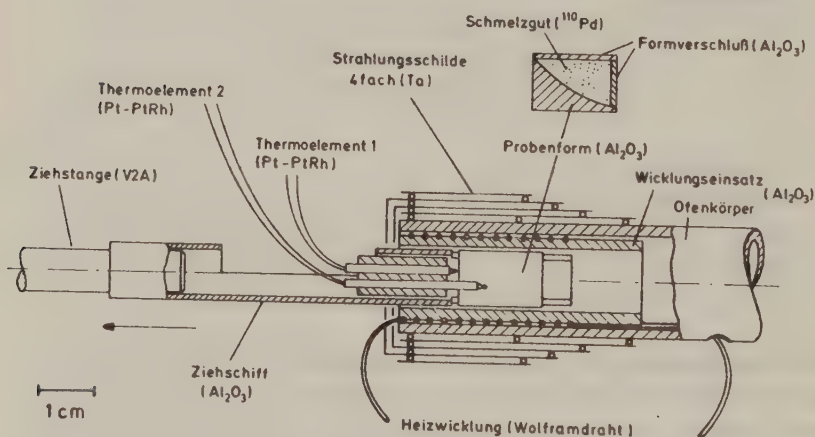


Abb. 4.1 Vorrichtung zum Ziehen eines Einkristalls nach dem Bridgman-Verfahren

Zur Feststellung der Güte und Orientierung des gezogenen Einkristalls durch Röntgenstreuung mußte die Al_2O_3 -Form nach dem Ziehprozeß einseitig vorsichtig abgeschliffen werden. Die freigelegte Seite wurde feingeschliffen, poliert und geätzt ($\text{HCL}:\text{HNO}_3 = 3:1/40^\circ\text{C}$). Der Rest der Probenform verblieb zur Erhaltung der höheren mechanischen Stabilität an der Probe. Bei Versuchsbestrahlungen von Al_2O_3 mit thermischen und schnellen Neutronen erwiesen sich die auftretenden Störakti-

vitäten nach 3 Tagen Abklingzeit als vernachlässigbar (zum Vergleich: notwendige Probenabklingzeit ca. 7 Tage, siehe Kap. 4.3). Dicke und Nettogewicht der Einkristallprobe konnten wegen des Al_2O_3 -Formanteils nur abgeschätzt werden.

$$d = 0.17(4) \text{ mm}$$

$$m = 80(10) \text{ mg}$$

Orientierung

Die Orientierung des Einkristalls erfolgte mit Hilfe von Laue-Aufnahmen. Das "Mosaikspread" betrug ca. $2-3^\circ$. Die Kristallachsen [100] bzw. [010] standen unter folgenden Winkeln zur Flächennormale der Probe

$$[100] : 53(2)^\circ$$

$$[010] : 47(2)^\circ$$

Der gezogene ^{110}Pd -Einkristall erfüllte damit die gestellten Anforderungen sehr gut.

Probenhalter

Die für die Tieftemperaturbestrahlungen notwendigen Probenhalter sind in Abb. 4.2 skizziert. Sie besitzen einen axialen Gewindestiftansatz für die Schraubmanipulationen beim Proben-transfer nach der Bestrahlung. Dabei werden die Probenhalter durch Einrasten ihrer laschenförmigen Unterteile in entsprechenden Arretierungsnuten der Probenabsetzpositionen gegen Verdrehen gesichert.

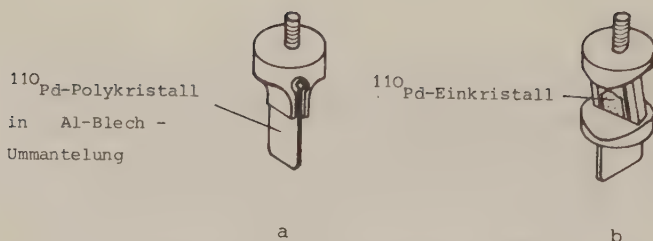


Abb. 4.2 Probenhalter für Tieftemperaturbestrahlungen

- Polykristallhalter (10 mm ϕ , Al 99.999 %): Ein ca. $9 \times 9 \text{ mm}^2$ großes ^{110}Pd -Folienstück ($m=66 \text{ mg}$) ist mit einem 0.1 mm starken Al-Blech (99.5 % Al) ummantelt und im Probenhalter eingeklemmt.
- Einkristallhalter (10 mm ϕ , AlMg3-Leg.): Entsprechend der gewünschten Orientierung der Einkristallprobe in der Meßhalterung ist ein ca. 2 mm starker Steg freigefräst, auf dessen Planfläche die Probe mit einer Al-Klammer (nicht eingezeichnet) befestigt ist. Zur Einstellung des Azimutwinkels (in der Detektorebene) dient die "Peilnase" am Probenhalterfuß.

Bestrahlungstechnik und Probentransfer

Tieftemperaturbestrahlungen

Die Neutronenbestrahlungen bei 4.6 K erfolgten in der Tieftemperaturbestrahlungsanlage (TTB) des Forschungsreaktors München (FRM). Die Bestrahlung und der anschließende Probentransfer bis in den Meßkryostaten sind in den Abb. 4.3 - 4.5 schematisch dargestellt. An einer ca. 12 m langen V2A-Kapillare wurde die Probe durch einen aufgesetzten Umschleuskryostaten hindurch in den kaltgefahrenen (4.6 K) Bestrahlungsrüssel "eingefädelt". Anschließend wurde der TTB-Rüssel in die Bestrahlungsposition gefahren (Abb. 4.3 a). Im Probenführungskopf befanden sich ein Thermoelement zur Überwachung

der Probentemperatur und ein Referenzwiderstand aus Pd-Draht zur Messung der integralen Strahlenschädigungsrate. Bei Bestrahlungsende wurde der TTB-Rüssel in das Reservebecken zurückgefahren. Nach einer Abklingzeit von ≈ 50 h wurde die Probe bis in die Schwenkposition des kaltgefahrenen Umschleuskryostaten gezogen (Abb. 4.3b), zum Probenköcher umgeschwenkt und dort abgeschraubt (Abb. 4.3c). Die Probe konnte nach dem Umsetzen des Kryostaten auf eine He-Transportkanne in ein kleines Glasdewar in dieser Kanne geschleust werden (Abb. 4.4). Dazu mußte das Umschleusrohr durch Erhöhung des Kannendrucks kaltgespült werden. Bei jedem Schleusvorgang erfolgte eine Temperaturkontrolle der Schleuswege und der Schwenkposition im Kryostaten. In der Transportkanne lagerte die Probe für eine weitere Abklingzeit von ca. 7 Tagen, um die Störaktivitäten von Probe und Probenhalter zu reduzieren. Der Probentransfer aus der Transportkanne in den Glas-Meßkryostaten erfolgte mit Hilfe eines Minidewars; durch die Haltezeit des Minidewars standen für diesen Vorgang ca. 2 Minuten zur Verfügung (Abb. 4.5). Die Probe wurde schließlich in einer Meßhalterung abgesetzt, die für den Fall der Einkristallmessung eine Genauigkeit des Winkels in der Detektorebene von $\Delta\varphi \approx \pm 3^\circ$ ermöglichte.

In allen Prinzipdarstellungen Abb. 4.3 - 4.5 sind die N_2 -Abschirmgürtel nicht berücksichtigt.

Raumtemperaturbestrahlungen

Neutronenbestrahlungen bei 300 (+30) K wurden am Reaktor BER II des Hahn-Meitner-Instituts Berlin in den dort zur Verfügung stehenden Standard-Bestrahlungseinrichtungen durchgeführt. Eine Probenkühlung war hier nur durch den Wärmekontakt zum Beckenwasser möglich. Nach der Mindestabklingzeit von 30 Minuten bei der Probenentnahme wurden diese stets in flüssigem Stickstoff aufbewahrt.

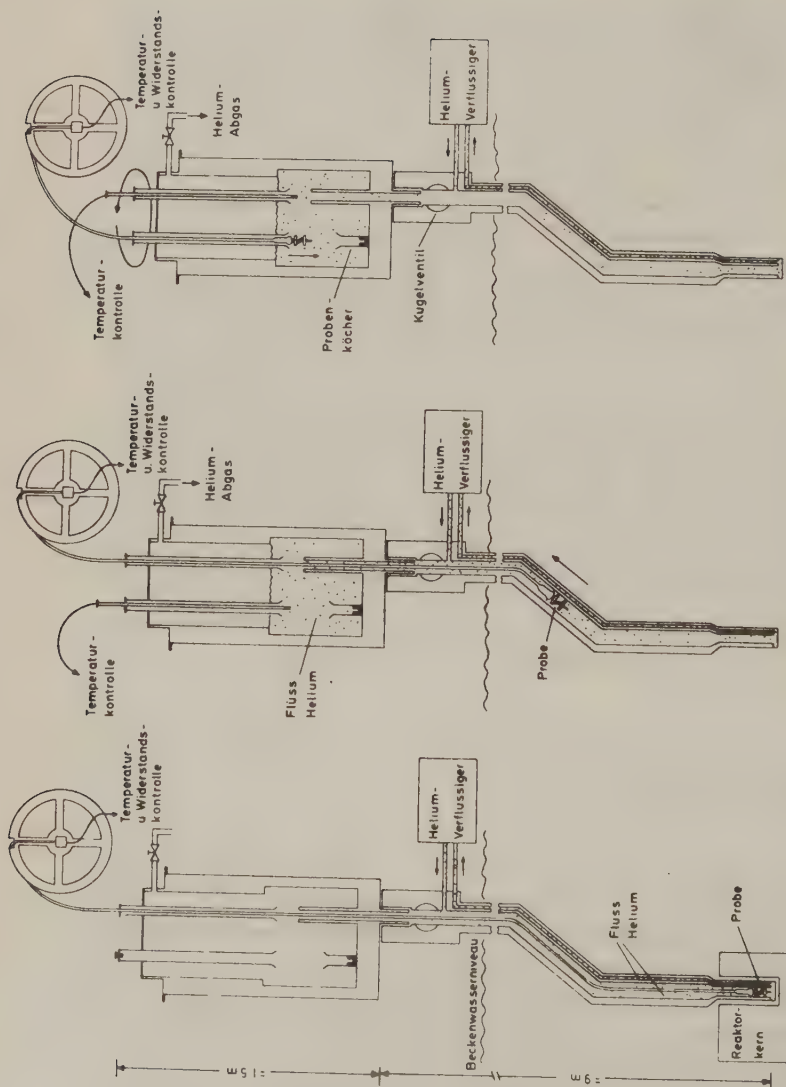


Abb. 4.3 a. Neutronenbestrahlung der Probe bei 4.6 K
 b. Ausschleusen der Probe aus dem TTB-Bestrahlungsrüssel
 c. Absetzen der Probe im Umschleusungskryostaten

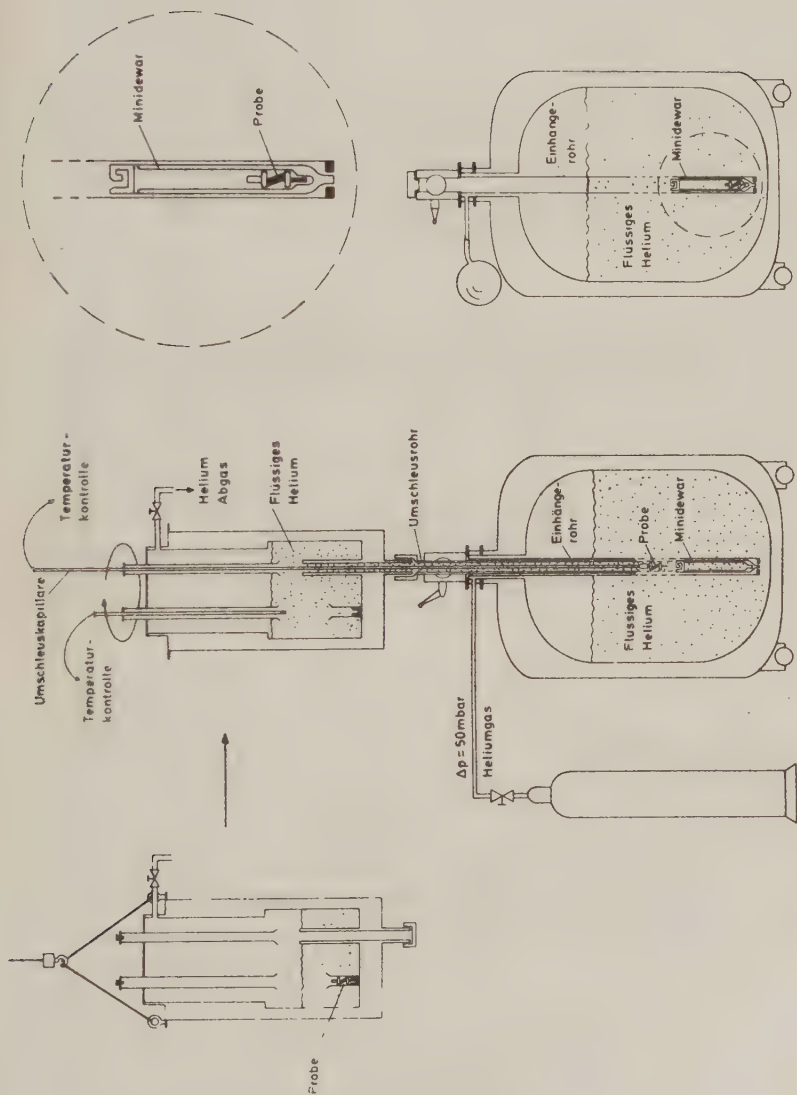


Abb. 4.4 Umschleusen der Probe in ein Minidewar in einer Helium - Transportkanne

Abklingen der Probe und Transport zur Meßapparatur

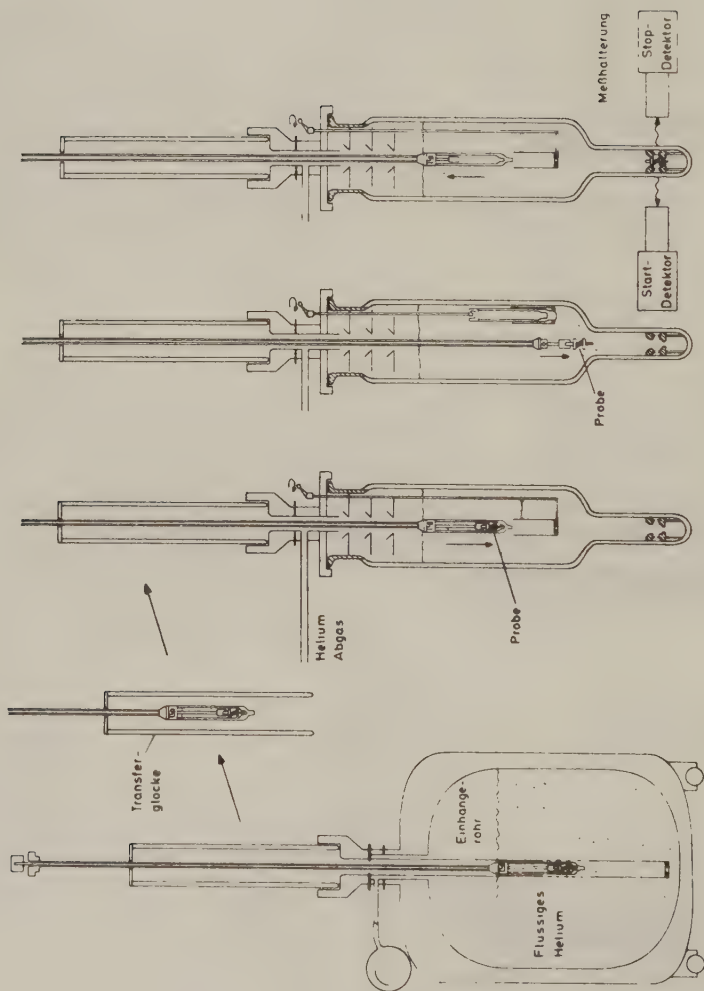


Abb. 4.5 Transfer der Probe in den Meßkryostaten mit Hilfe eines Minidewars

4.2 Meßapparaturen

Die DPAC-Messungen wurden in 4-Detektor-Winkelkorrelationsapparaturen des Physikdepartments E15 der Technischen Universität München und des Bereiches Kern- und Strahlenphysik im Hahn-Meitner-Institut Berlin durchgeführt.

Münchener Apparatur

Mit $1\frac{1}{2} \times 2$ " NaJ-Kristallen auf VALVO XP2020- bzw. RCA 8575-Photovervielfacherröhren waren jeweils 2 Detektoren unter 90° zueinander dem Start (VALVO) bzw. dem Stop (RCA) fest zugeordnet. Damit wurden je zwei 180° - und 90° -Spektren in insgesamt 1024 Kanälen eines HP-Vielkanalanalysators aufgenommen. In Abweichung von der in /42/ beschriebenen Standard-Slow-Fast-Koinzidenz wurden hier nur solche Zeitsignale auf den Zeitimpulshöhenwandler (TAC) gegeben, die einen auf den TAC-Bereich abgestimmten Zeitfilter passiert hatten /43/.

Berliner Apparatur

Hier wurde ebenfalls mit $1\frac{1}{2} \times 2$ " NaJ-Kristallen - sämtlich auf 56 DVP-VALVO-Röhren - gemessen. Ein erweiterter Elektronikaufbau und umfangreichere Datenspeicherkapazität gestatteten es hier, alle 4 Detektoren gleichberechtigt für Start und Stop einzusetzen. Damit konnten vier 180° - und acht 90° -Spektren aufgenommen werden, die in 2048 Kanälen pro Spektrum als Ausgangsinformation eines Zeit-Digitalwandlers (TDC) direkt in einen Prozeßrechner (Siemens 301) gegeben wurden (Abb. 4.6).

Die ursprünglich für Neutronen-Flugzeitexperimente konzipierte Prozeßrechneranlage mit CAMAC-Instrumentierung wurde im Rahmen dieser Arbeit auf die speziellen Bedürfnisse der Winkelkorrelationsmessung umgestellt. Sie gestattet neben der Datenerfassung und umfangreichen Datenspeicherung auch eine

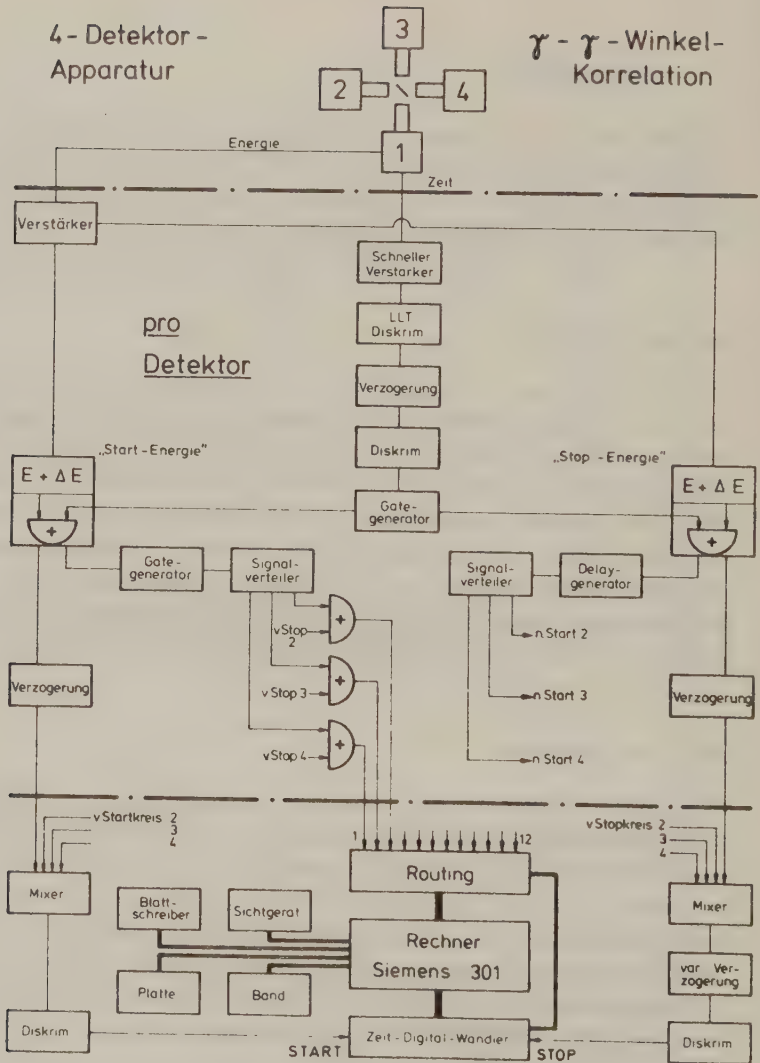


Abb. 4.6 $\gamma - \gamma$ - Winkelkorrelationsapparatur am Reaktor BER II mit direktem Rechneranschluß zur Datenspeicherung und - Teilauswertung, sowie zur Experimentüberwachung.

Experimentüberwachung. Zusätzlich bietet sie die Möglichkeit der Datenvorauswertung im Dialogverkehr und des Datenvergleichs mit früheren Messungen "on line" zur laufenden Messung. Eine ausführliche Beschreibung dieses rechnergeführten Winkelkorrelationsexperiments ist als HMI-Bericht erschienen /44/.

4.3 Durchführung der Experimente

Probenbestrahlungen

Die Daten für die Bestrahlungen der einzelnen Proben sind in der Tabelle 4.1 eingetragen.

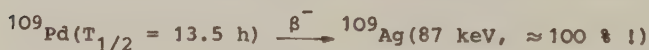
Tab. 4.1 Daten für die Neutronenbestrahlungen der Proben an den Forschungsreaktoren FRM und BER II

	Polykristall 1	Polykristall 2	Einkristall
Bestrahlungs-			
-Zeit	32 h	50 h	12 h
-Temperatur	4.6 K	300(+30) K	4.6 K
-Ort	FRM/TTB ²	BER II	FRM/TTB ²
-Position	Kernrand 19.5 cm vor Pos. 47	Kernrand (Karussell) Pos. 57	im Kern orig.TTB ² Pos. 47
therm. Neutronenfluß Φ_{th} [n/cm ² s]	3.4×10^{12}	2.2×10^{12}	1.5×10^{13}
schneller Neutronenfluß θ_s [n/cm ² s]	7.5×10^{10}	4.3×10^{10}	1.5×10^{13}
therm. Neutronendosis D_{th} [n/cm ²]	4×10^{17}	4×10^{17}	6.5×10^{17}
schnelle Neutronendosis D_s [n/cm ²]	8.8×10^{15}	7.3×10^{15}	6.5×10^{17}

²TTB: Tieftemperaturbestrahlungsanlage ($T_{Bestr.} = 4.6$ K)

Die Bestrahlung des Einkristalls erfolgte bewußt mit einer gegenüber dem Polykristall 1 ca. 75-fachen Dosis von epithermischen bzw. schnellen Neutronen ($E > 0.1$ MeV), um den Einfluß einer höheren globalen Defektkonzentration auf die DPAC-Spektren zu untersuchen.

Die Messung der 95 keV-247 keV-Kaskade im ^{111}Cd wird zu Beginn im wesentlichen durch die Störaktivität von



stark erschwert. Diese Aktivität wird bei einem Verhältnis der Isotopenanteile h und n_{th} -Einfangquerschnitte σ von

$$\frac{h(^{108}\text{Pd})}{h(^{110}\text{Pd})} \approx 1.4 \% \qquad \frac{\sigma(^{108}\text{Pd})}{\sigma(^{110}\text{Pd})} = 55.5$$

im quasilinearen Bereich der ^{109}Pd -Aktivierung (≤ 30 h) in der gleichen Größenordnung (≈ 0.8 -fach) wie die ^{111}Pd - ^{111}Ag -Aktivität erzeugt. Außerdem zerfällt diese Störaktivität zu $\approx 100 \%$ über 87 keV- γ -Strahlung; diese steht der 95-keV- ^{111}Cd -Meßlinie (Start) von nur 2 % der ^{111}Ag -Aktivität nach Bestrahlungsende in einem Intensitätsverhältnis 400:1 gegenüber. Um die Intensität der Störlinie auf ca. 10 % der Meßlinie zu drücken, mußten die bestrahlten Proben für etwa eine ^{111}Ag -Halbwertszeit (7.5 d) abklingen. Dieses geschah für die am FRM bestrahlten Proben in der 50 l-He-Transportkanne und für die BER II-Probe in flüssigem Stickstoff.

Messungen und Probentemperaturen

Polykristallprobe (aus FRM/TTB-Bestrahlung)

Aufgrund der bereits erwähnten Zählratenschwierigkeiten der benutzten γ - γ -Kaskade war für jede Einzelmessung eine Meßzeit von $\geq T_{1/2}(^{111}\text{Ag}) = 7.5$ d sinnvoll bis notwendig. Wegen des nicht unerheblichen Bestrahlungs- und Transferaufwandes bei

den Tieftemperaturbestrahlungen mußte andererseits eine Einzelprobe für mehrere Temper-Meßläufe ausgenutzt werden. Die erste Messung wurde daher oberhalb der optimalen Koinzidenzrate bzw. Probenaktivität begonnen. Die integrale Zählrate pro Detektor betrug hier 60000/sec, die Einzelzählraten in den Energiefenstern lagen bei 4000/sec (Start) und 7000/sec (Stop). Das hatte anfangs einen Untergrundanteil in den Koinzidenzspektren von etwa 50 % zur Folge.

Um den in der ersten Messung bei 4.6 K gefundenen Meßeffect zu analysieren, wurde die Probe in einem isochronen Temperprogramm jeweils für $\Delta t = 10$ min auf eine Temperatur T_{Temp} angelassen und dann bei 4.2 K erneut gemessen. Eine optimale Ausnutzung der primär zur Verfügung stehenden Probenaktivität war dabei sehr schwierig. Die unbekannte Temperatur für den irreversiblen Vorgang der Defektausheilung mußte mit einer minimalen Anzahl von Probertemperaturen so eingeschachtelt werden, daß eine eindeutige Zuordnung zu einer definierten Erholungsstufe möglich wurde (siehe Kap. 6.3, Seite 67). Zum Tempern wurde die Probe an eine Kapillare mit Thermoelement geschraubt und bei niedrigem He-Flüssigkeitsspiegel in die darüber stehende "warme" He-Gassäule gezogen. Die erreichten Temperaturgradienten $\Delta T / \Delta h$ und Tempergenauigkeiten ΔT sind der Tabelle 4.1 zu entnehmen. Ab der zweiten Temperung mußte die Abnahme der Probenaktivität durch Verringerung der Detektorabstände teilweise kompensiert werden (siehe Tab. 5.1, Seite 53). Vor der dritten Temperung wurde die Probe in flüssigem Stickstoff nach Berlin transportiert. In der Winkelkorrelationsapparatur am Reaktor BER II konnte die restliche Probenaktivität durch die gleichzeitige Aufnahme von 12 Einzelspektren wesentlich effektiver genutzt werden. Der dritte Tempervorgang wurde hier entsprechend in der N_2 -Gassäule über dem flüssigen Stickstoff im Meßkryostaten vorgenommen (siehe Tabelle 4.1, S. 50); die Messung erfolgte danach bei 77 K (N_2 -Bad). Zur vierten Temperung wurde ein Ölbad benutzt.

	T_{Temp}	$\Delta T/\Delta h$	Medium	T_{mess}
0.	$4.6 \text{ K} \equiv T_{\text{Bestr}}$	-	-	4.2 K
1.	53(5) K	$3^{\circ}/\text{cm}$	He-Gas	4.2 K
2.	105(3) K	$1^{\circ}/\text{cm}$	He-Gas	4.2 K
3.	235(6) K	$4^{\circ}/\text{cm}$	N_2 -Gas	77 K
4.	430(4) K	-	Ölbad	77 K

Tab. 4.1 Temperung der tieftemperaturbestrahlten
Polykristallprobe

Polykristallprobe (aus BER II-Bestrahlung)

Die Messungen an dieser Probe wurden in der Apparatur am BER bei 77 K durchgeführt. Eine Probentemperatur bei 1500(20) K erfolgte für ca. 6 h im Rohofen bei Argondurchfluß.

Einkristallprobe (aus FRM/TTB-Bestrahlung)

Es wurde je eine Messung an der ungetemperten Probe sowie nach Temperung bei 55(5) K durchgeführt, und zwar bei 4.2 K in der Münchner Apparatur. Die Temperung erfolgte in gleicher Weise wie beim TTB-bestrahlten Polykristall. Die Detektoren waren in den Richtungen $[100]$, $[010]$, $[\bar{1}00]$ und $[0\bar{1}0]$ des Probenkristalls aufgestellt; die Winkelgenauigkeit der Kristallorientierung im Detektorsystem betrug etwa $\pm 3^{\circ}$.

5. Auswertung und Ergebnisse

Polykristallmessungen

Jeder 4-teilige Spektrensatz ($2 \times I(180^\circ, t)$, $2 \times I(90^\circ, t)$) aus den Messungen an der Münchner Apparatur wurde wie folgt verarbeitet

$$(47) \quad R_{\text{Mü}} = \frac{2}{3} \left[\left(\frac{I_1(180^\circ, t) \times I_2(180^\circ, t)}{I_3(90^\circ, t) \times I_4(90^\circ, t)} \right)^{1/2} - 1 \right]$$

In entsprechender Weise wurde der 12-teilige Spektrensatz ($4 \times I(180^\circ, t)$, $8 \times I(90^\circ, t)$) aus den Messungen an der Berliner Apparatur behandelt.

$$(48) \quad R_{\text{Ber}} = \frac{2}{3} \left[\left(\frac{I_1(180^\circ, t) \times \dots \times I_4(180^\circ, t)}{(I_5(90^\circ, t) \times \dots \times I_{12}(90^\circ, t))^{1/2}} \right)^{1/4} - 1 \right]$$

Darin sind die $I(\theta, t)$ die Intensitätsverteilungen der Koinzidenzereignisse (Meßspektren) nach Abzug eines konstanten Untergrundes entsprechend Meßgleichung 26 mit der Winkelkorrelationsfunktion 27 (Kap. 2.2, Seite 14).

$$(49) \quad I(\theta, t) = N \exp(-t/\tau) (1 + A_{22} G_{22}(t) P_2(\cos \theta))$$

Durch diese Vorauswertung erhält man bis auf vernachlässigbare quadratische Glieder die Störamplituden $A_{22} G_{22}(t)$. Nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate wurde den aufbereiteten Spektren $R_{\text{Mü}}$ und R_{Ber} eine Funktion F angepaßt, die einen Anteil f von Sondenkernen mit eindeutiger Störung (diskrete Frequenz) und einen Anteil $(1-f)$ mit einer Verteilung von schwachen Sondenstörungen (Frequenzverteilung um Null) berücksichtigt.

$$(50) \quad F = A_{22} \sum_{n=0}^3 s_{2n} \left[f \cos(n\omega_0 t) + (1-f) e^{-n\delta_L t} \right]$$

Die Koeffizienten s_{2n} können für Polykristalle den Tabellen von Alder et al. /45/ entnommen werden. In der Anpassung nach Gl. 50 wird eine Wechselwirkung mit axialsymmetrischen Feldgradienten angenommen. Als Frequenzverteilung wurde hier eine Lorentzverteilung (34) gewählt. Der Ansatz einer Gaußverteilung (35) brachte in den meisten Fällen eine geringfügige Verschlechterung der Anpassung. Die Einführung eines Amplitudenanteils f' für völlig ungestörte Sondenumgebungen $G_{22}(t) \equiv 1$ führte hier durch die gleichzeitige Berücksichtigung von nur schwachen Störungen (Frequenzverteilung um Null) zu nicht eindeutigen Ergebnissen. Für eine Separation dieser schlecht unterscheidbaren Störungen ist die Meßstatistik der vorliegenden Spektren nach ca. 2-3 Kernlebensdauern zu schlecht, bzw. der Untergrund durch zufällige Koinzidenzen ist zu hoch.

Die Ergebnisse der Meßdatenanpassungen sind der Tabelle 5.1 zu entnehmen. Darin ist nach Gl. 25 aus der Grundfrequenz ω_0 die Quadrupolkopplungskonstante berechnet.

$$\frac{e^2 Qq}{h} = \frac{10}{3\pi} \omega_0$$

Die nach (47, 48) aufbereiteten Meßspektren mit den angepaßten Theoriekurven (50) sind in den Abbildungen 5.1-5.3 auf den Seiten 54 - 56 gezeigt. Alle Spektren wurden durch eine entsprechende Raumwinkelkorrektur auf den gleichen Detektor-Proben-Abstand (5 cm) bezogen.

Tab. 5.1 Ergebnisse der Anpassungen für die Polykristallmessungen

T_{Bestr} [K]	T_{Temp} [K]	T_{mess} [K]	$\frac{e^2 q Q}{h}$ [MHz]	f [%]	δ_L [MHz]	A_{22}^{eff} [%]	Abstand: Dektor -Probe [cm]
4.6(2)	4.6	4.2	85.5(1.5)	18.2(1.4)	2.08(.15)	-11.4(3)	6.0(3)
4.6(2)	53(5)	4.2	87.6(1.0)	20.1(1.0)	2.05(.15)	-11.8(2)	6.0(3)
4.6(2)	105(3)	4.2	87.5(1.5)	14.0(1.6)	2.4 (.2)	-10.4(3)	5.0(3)
4.6(2)	235(6)	77	85.7(1.0)	13.8(1.5)	2.23(.15)	-9.8(3)	4.0(3)
4.6(2)	430(4)	77	-	-	1.11(.14)	-8.7(2)	3.2(3)
300(+30)	300(+30)	77	-	-	1.73(.07)	-10.9(3)	5.0(3)
300(+30)	1500(20)	77	-	-	0.10(.05)	-10.7(2)	5.0(3)

Makroskopische Strahlenschädigung der Probe

Gleichzeitig mit der Bestrahlung der DPAC-Probe wurde im Probenführungskopf eine Referenzprobe (Widerstandsdraht) aus natürlichem Palladium bestrahlt. Aus der Widerstandsänderung $\Delta\rho$ dieser Drahtprobe kann die makroskopische Probenschädigung der DPAC-Probe abgeschätzt werden. Hierzu wurden folgende Widerstandsmessungen durchgeführt:

1. vor Bestrahlung bei Raumtemperatur $R(\text{RT})$
2. vor Bestrahlung bei Heliumtemperatur $R(4.2 \text{ K})_{\text{VB}}$
3. nach Bestrahlung bei Heliumtemperatur $R(4.2 \text{ K})_{\text{NB}}$

Die Geometriefaktoren des Widerstands-Drahtes werden durch Verhältnisbildung der Widerstandsmeßwerte bei Raumtemperatur und Heliumtemperatur eliminiert

$$(51) \quad \frac{R(\text{RT})}{R(4.2 \text{ K})} = \frac{\rho_{\text{Ph}}(\text{RT}) + \rho(4.2 \text{ K})}{\rho(4.2 \text{ K})} = \frac{\rho_{\text{Ph}}(\text{RT})}{\rho(4.2 \text{ K})} + 1$$

Der Phononenanteil des Widerstandes läßt sich nach Gl. 52 berechnen (Seite 57).

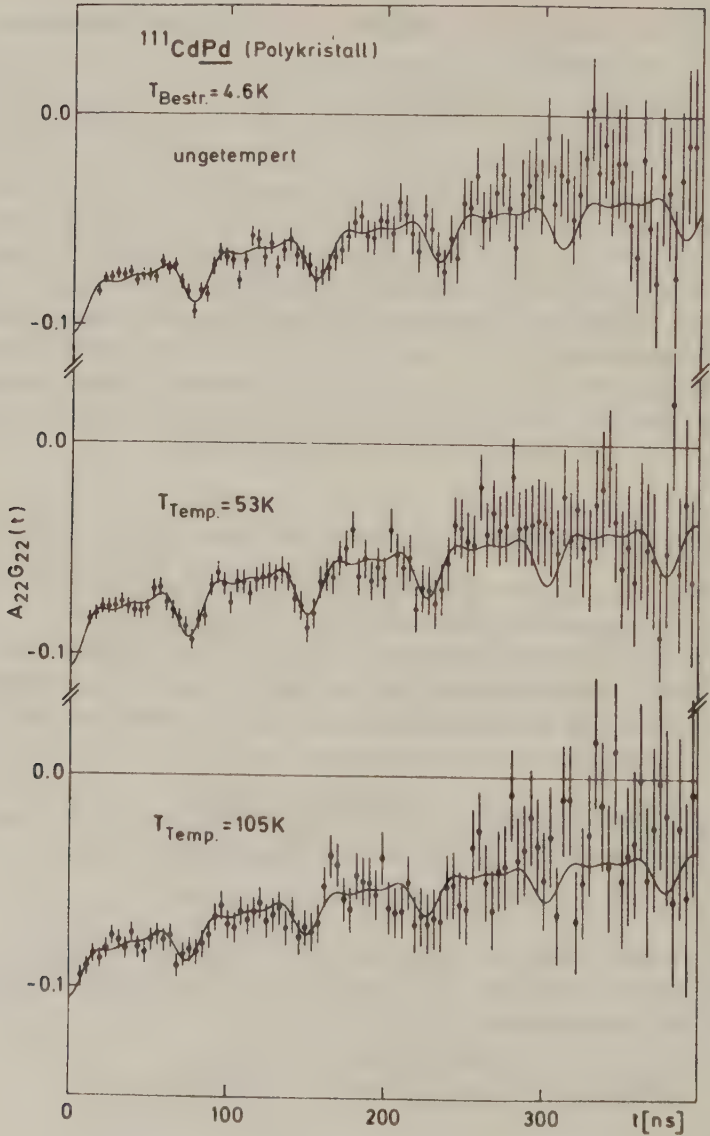


Abb. 5.1 DPAC - Störfunktionen von ^{111}Cd in polykristallinem Palladium nach Neutroneneinfang bei 4.6 K. Untersuchung der defektspezifischen Sondenstörungen durch isochrones Tempern der Probe ($\Delta t = 10 \text{ min.}$)

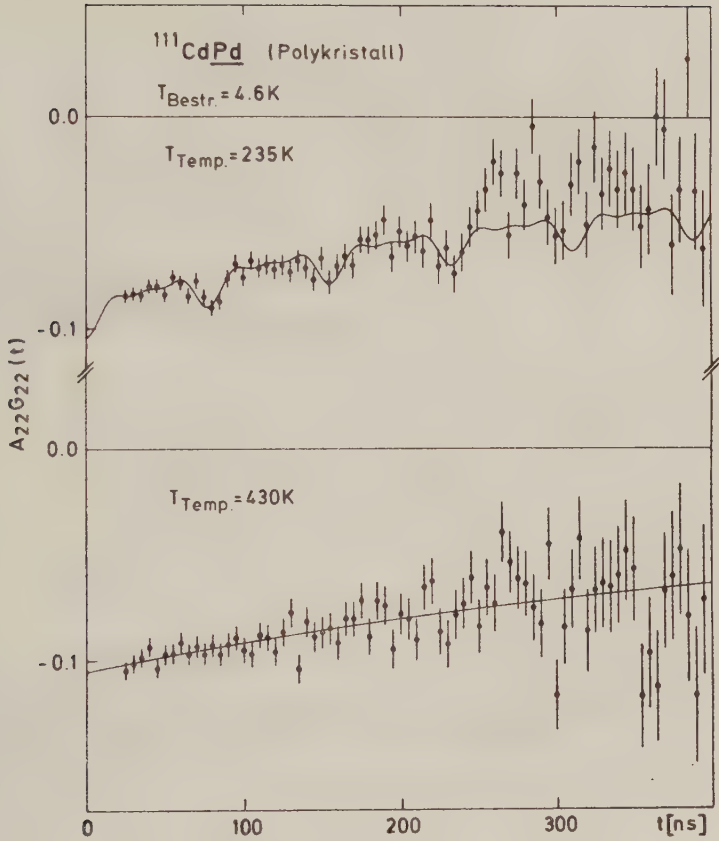


Abb. 5.2 DPAC - Störfunktionen von ^{111}Cd in polykristallinem Palladium nach Neutroneneinfang bei 4.6 K. Die Spektren zeigen die Ausheilung eines sondenlokalisierten Einzeldefekts durch Proben temperung für $\Delta t = 10 \text{ min.}$ bei 430 K.

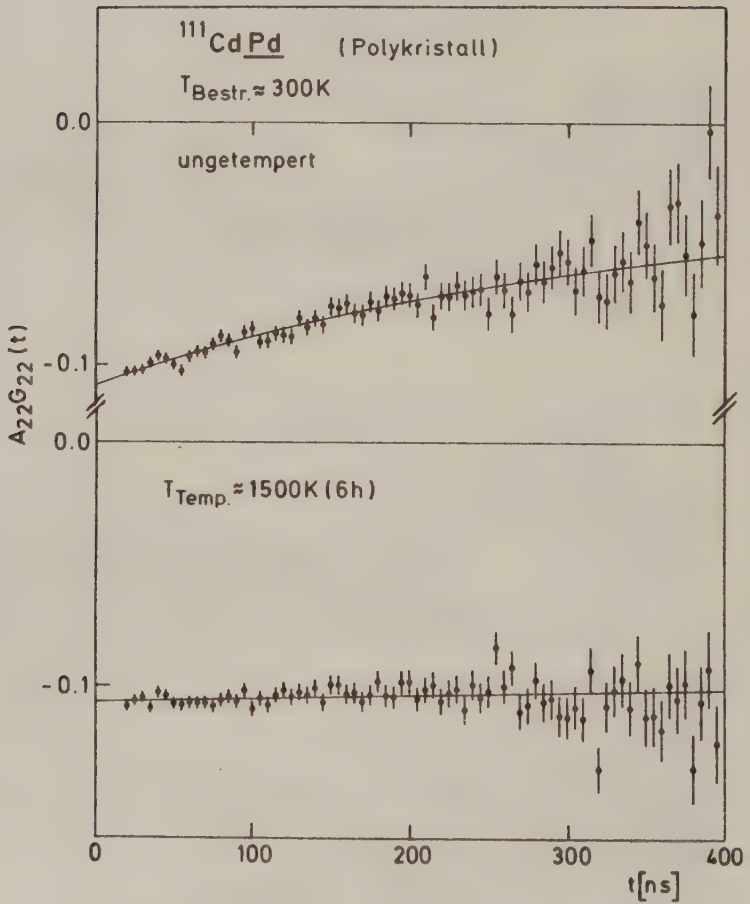


Abb. 5.3 DPAC - Störfunktionen von ^{111}Cd in polykristal-
linem Palladium nach Neutroneneinfang bei
300(+30) K. Die Probentemperatur bei 1500 K bewirkt
eine Ausheilung der schwachen Sondenstörungen.

$$(52) \quad \rho_{Ph}(\Delta T) = \rho_o(1 + \alpha \Delta T)$$

ρ_o : Spezifischer Widerstand bei 0°C

Dieser beträgt für Palladium bei Raumtemperatur

α : Widerstands-Temperaturkoeffizient

$$\rho_{Ph}(RT) = 10.55 \mu\Omega\text{cm}$$

ΔT : Temperatur in °C

Für die Differenz $\Delta\rho$ des Widerstandes vor Bestrahlung (vB) und nach Bestrahlung (nB) erhält man also

$$(53) \quad \Delta\rho = \rho_{nB}(4.2 \text{ K}) - \rho_{vB}(4.2 \text{ K})$$

$$= \left(\frac{1}{\frac{R(RT)}{R_{nB}(4.2 \text{ K})} - 1} - \frac{1}{\frac{R(RT)}{R_{vB}(4.2 \text{ K})} - 1} \right) \cdot 10.55 \mu\Omega\text{cm}$$

Als Widerstandsänderung wurde in diesem Experiment ermittelt:

$$\Delta\rho = 16(2) \text{ n}\Omega\text{cm}$$

Der Widerstandsbeitrag pro Frenkelpaar beträgt für Palladium

$$\rho_{FP} = 9(1) \cdot 10^{-4} \Omega\text{cm/at.fr.} \quad /31/$$

Damit erhält man eine makroskopische Konzentration von Frenkelpaaren

$$c_{FP} = 18(2) \text{ ppm}$$

Einkristallmessungen

Durch die Einführung der "effektiven" Fourierkoeffizienten S_n^{eff} in Gl. 31 (Seite 16) konnte die Auswertung der Einkristallspektren in diesem Fall analog zur Auswertung der Polykristallspektren vorgenommen werden. Die Fourierkoeffizienten betragen für die Beobachtung in den Detektoren unter dem Winkel $\theta=90^\circ$ das -0.5-fache derer unter dem Beobachtungswinkel $\theta=180^\circ$.

Im Fall der Defektlagen in den $\langle 110 \rangle$ -Richtungen ist für die Berechnung der Fourierkoeffizienten S_n^{eff} über die entsprechenden 12 möglichen Lagen der EFG nach Gl. 31 zu mitteln. Aufgrund der hohen Symmetrie der $\langle 100 \rangle$ -Beobachtungsrichtungen lassen sich die 12 EFG - Lagen in 3 Gruppen mit jeweils 4 äquivalenten EFG-Lagen aufteilen (Abb. 5.4).

I: 1-2-3-4 II: 5-6-7-8 III: 9-10-11-12

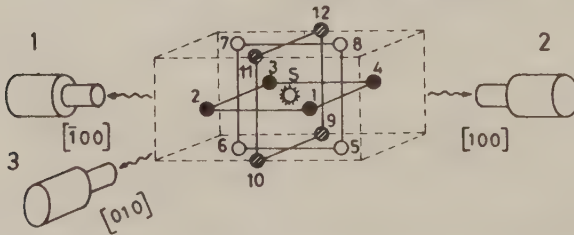


Abb. 5.4 Darstellung der 12 nächsten Nachbarn zur Sonde S im kubisch flächenzentrierten Gitter zur Veranschaulichung der EFG-Beiträge in den $\langle 110 \rangle$ -Richtungen

Die EFG liegen hierbei jeweils in der Richtung der Verbindungslinie von der Sonde S zur entsprechenden nummerierten Gitterposition. Für die Beobachtung unter 180° sind von den 3 repräsentativen EFG-Lagen I, II, III nochmals zwei äquivalent (Detektor 1 - Detektor 2: $I \cong II$).

Für die Berechnung der S_n^{eff} ergeben sich im Fall von $\langle 100 \rangle$ -Defektlagen durch Symmetrieüberlegungen ähnliche Vereinfachungen. Die insgesamt 6 Defektlagen führen zu 3 verschiedenen EFG-Lagen. Von diesen befindet sich stets eine in der Beobachtungsachse eines Detektors. Sie trägt dadurch zur Störung nur mit einem zeitunabhängigen Term bei. Für die Beobachtung unter 180° sind außerdem noch die beiden anderen Lagen senkrecht zur Beobachtungsachse äquivalent.

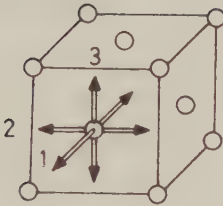


Abb. 5.5 Darstellung der 3 möglichen Feldgradientenlagen im Fall von $\langle 100 \rangle$ -Defekten

Die nach Gl. 47 aufbereiteten Meßspektren entsprechen der Winkelkorrelationsfunktion $W(\vec{k}_1, \vec{k}_2, t) - 1$ in Meßgleichung 33 (Seite 16). Sie sind für die ungetemperte und die bei 55 K getemperte Einkristallprobe in Abb. 5.6 dargestellt. Darüber sind einzeln die theoretischen Winkelkorrelationsfunktionen für die Defektlagen in $\langle 100 \rangle$ - und $\langle 110 \rangle$ -Richtung eingezeichnet. Als durchgezogene Kurve wurde den Meßdaten die eindeutig besser zutreffende Funktion für den $\langle 110 \rangle$ -Defekt angepaßt. Wie bei den Polykristallspektren wurde wegen der abfallenden Spektrenkomponente auch eine lorentzförmige Verteilung um die Frequenz Null berücksichtigt. Die Daten der Anpassung sind in Tab. 5.2 eingetragen.

Tab. 5.2 Ergebnisse der Anpassungen für die Einkristallmessungen

T_{Bestr} [K]	T_{Temp} [K]	T_{Mess} [K]	$\frac{e^2 q Q}{h}$ [MHz]	f [%]	δ_L [MHz]	A_{22}^{eff} [%]	Abstand: Detektor- Probe [cm]
4.6(2)	4.6(2)	4.2	85.8(1.2)	26.2(2.0)	2.3(2)	10.4(5)	7.0(3)
4.6(2)	55(5)	4.2	86.8(1.7)	23.7(3.2)	1.5(5)	10.1(7)	7.0(3)

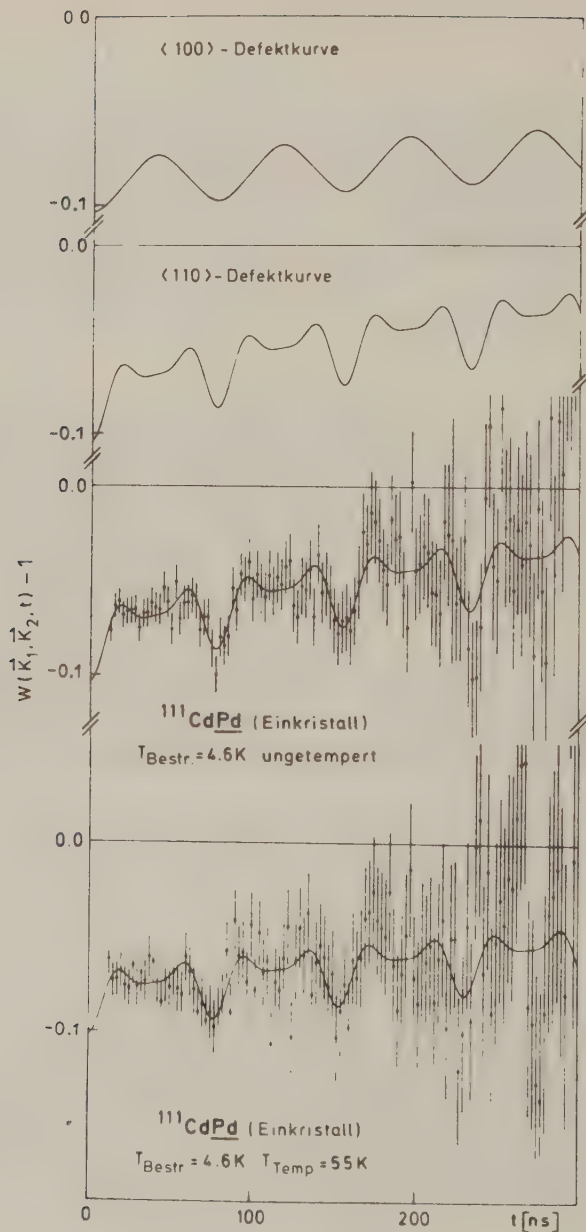


Abb. 5.6 DPAC-Störfunktionen von ^{111}Cd in einer Pd-Einkristallprobe nach Neutroneneinfang bei 4.6 K. Den in <100> - Richtungen aufgenommenen Spektren ist eine Theoriefunktion für eine <110> -Defektlage angepaßt.

6. Diskussion

Als Diskussionsgrundlage seien nochmals die wesentlichen experimentellen Ergebnisse kurz zusammengefaßt.

Die bei 4.6 K bestrahlte Polykristallprobe zeigt für $f=19(1) \%$ aller Sondenkerne eine diskrete Quadrupolwechselwirkungsfrequenz $\frac{e^2qQ}{h} = 86.5 (1.5) \text{ MHz}$ mit ungedämpfter Amplitude. Setzt man für^h das Quadrupolmoment des Sondenniveaus $Q=0.8(2)b$ an /46/, so entspricht dieses einem elektrischen Feldgradienten $eq=4(1) \cdot 10^{17} \text{ V/cm}^2$.

Der Rest der Sondenkerne (81 %) befindet sich in Umgebungen mit schwachen Störungen, was in einer Lorentzverteilung um die Frequenz Null ($\delta_L=2.2(1) \text{ MHz}$) zum Ausdruck kommt.

Die Amplitude der diskreten Frequenz wird durch Proben temperatur bei 105 K auf $f=14.0(1.5) \%$ reduziert und bleibt dann unverändert bis 235 K. Die Frequenz verschwindet vollständig bei 430 K. Hier ändert sich auch erstmals merklich die Verteilungsbreite der schwachen Störungen ($\delta_L=1.1(1) \text{ MHz}$); sie verschwinden nahezu vollständig ($\delta_L=0.10(5) \text{ MHz}$) durch Anlassen der Probe bei 1500 K.

An einer tieftemperaturbestrahlten Einkristallprobe wurde die Lage des diskreten EFG in der $\langle 110 \rangle$ -Kristallachse festgestellt bzw. die $\langle 100 \rangle$ -Kristallachse ausgeschlossen.

Die Diskussion soll sich im wesentlichen mit dem diskreten EFG-Beitrag befassen und vor allem zur Beantwortung nachstehender Fragen führen.

1. Können Defekte eindeutig als Ursache für die Sondenstörungen angenommen werden?
2. Welcher Defektart ist die diskrete Frequenz zuzuordnen?
3. Wie vernünftig ist diese Zuordnung im Hinblick auf den vorangegangenen, definierten Defekterzeugungsprozeß? Welche Rückschlüsse können aus der Anzahl der Sondenkerne mit

diskreter Störung auf den vorausgesagten Mechanismus der Defektproduktion (Kap. 3.3) gezogen werden?

4. Inwieweit kann durch eine hier vorgenommene Zuordnung die gemessene Frequenz als "Fingerabdruck" einer bestimmten Defektart auf andere Messungen mit komplizierter Defekterzeugung (DPAD ("in-beam"), Ionenimplantation, etc.) übertragen werden?

6.1 Eindeutigkeit der Defekte als Störursache

Als Konkurrenzprozesse, die in einem kubischen Gitter ebenfalls zu diskreten EFG führen können, sind im Prinzip folgende Fälle denkbar.

- i) Ausscheidung von nichtkubischen Phasen, die den Sondenkern enthalten
- ii) Anlagerung einzelner Fremdatome an die Sondenatome.

Beide Prozesse sind aber im wesentlichen auf Legierungen beschränkt, insbesondere wenn dabei die Sonden auf mechanischem bzw. (elektro-) chemischem Wege in den Festkörper eingebracht werden.

Bei der Erzeugung von diskreten EFG durch angelagerte Fremdatome müssen diese für den entsprechenden Anteil f der Sonden gleichartig sein. Wie Experimente an $\text{Ag}_{1-x}\text{Au}_x$ -Legierungen mit ^{111}Cd -Sonden (^{111}In oder ^{111}Ag als Mutteraktivität) zeigen, können die diskreten Störungen dann - unterstützt durch Nahordnungseffekte - selbst bei verdünnten Legierungen ($x = 0.01$) in einem mit den Ergebnissen dieser Arbeit vergleichbaren Umfang auftreten /47/.

Für die tieftemperaturbestrahlte Pd-Probe ist die Anwesenheit von Fremdatomen in unmittelbarer Nähe des Sondenatoms in der erforderlichen Größenordnung aber ausgeschlossen. Die Tatsa-

che, daß die ^{111}Cd -Sonde selbst Fremdatom in der Pd-Wirtsma-
trix ist, ändert natürlich nichts an der kubischen Symmetrie
bezüglich des Sondenatoms. Damit verbleibt nur ein Einfluß
von chemischen Verunreinigungen, die quasihomogen, d.h. gelöst
und als Ausscheidungen an Korngrenzen vorliegen. Bei einer An-
zahl von 12 möglichen nächsten Nachbarn zur Sonde entspräche
der gemessene Anteil $f = 19\%$ von Sondenkernen mit eindeuti-
ger Störung nach der statistischen Wahrscheinlichkeit

$$(54) \quad f = 12 c_{\text{FA}} (1 - c_{\text{FA}})^{11}$$

einer Fremdatomkonzentration $c_{\text{FA}} = 2\%$. Das verwendete Proben-
material weist eine derart hohe Konzentration von noch dazu
gleichartigen Verunreinigungsatomen mit Sicherheit nicht auf.
Eine gegenüber der statistischen Verteilung erhöhte effektive
Fremdatomkonzentration an der Sonde durch Nahordnungs- bzw.
chemische Korrelationseffekte /47/ ist nicht möglich, da sich
kein thermodynamisches Gleichgewicht einstellen kann.

Danach müßte also eher bei einer Raumtemperatur - Neutronen-
bestrahlung mit Fremdatomen als konkurrierenden Störungen ge-
rechnet werden; gerade dort wird aber eine diskrete Störung
nicht gemessen (Abb. 5.3, Seite 56).

Auch für die breite Verteilung von kleinen EFG durch Störun-
gen von 2.-nächsten Nachbarn (abfallende Spektrenkomponente)
können Verunreinigungsatome als Ursache ausgeschlossen wer-
den. Die Abnahme dieser Spektrendämpfung um den Faktor 2 durch
Probentemperatur bei 430 K und schließlich ihr vollständiges
Verschwinden bei 1500 K zeigen deutlich eine Defektausheilung
an. Führt man nach dem Abklingen der Probenaktivität eine er-
neute Bestrahlung durch, wird für die neu erzeugten Sonden
eine Spektrendämpfung in reproduzierbarer Stärke wieder einge-
führt.

Die Diskussion des Fremdatomeinflusses hat damit deutlich de-
monstriert, daß bei sondenkorrelierter Defekterzeugung durch
Bestrahlung für den Nachweis sondenlokalisierter Defekte re-

lativ geringe Anforderungen an die chemische Reinheit der Proben gestellt werden (≈ 0.5 % ungleichartige Fremdatoman-teile).

Im Gegensatz dazu spielen derartige Probenverunreinigungen für das Ausheilverhalten der so erzeugten Defekte eine ent-scheidende Rolle. Dieses wird bei der Erholung der Fehlstel-len in Kap. 6.3 auf Seite 77 näher diskutiert.

6.2 Die Defektkonzentration

Bei der Beobachtung von Defekten und ihren Reaktionen im Festkörper spielt die Defektkonzentration eine wesentliche Rolle. Der Begriff der makroskopischen Defektkonzentration, wie er allgemein als integrale Konzentrationsangabe verstan-den wird, reicht für die Beschreibung von mikroskopischen Fehlstellenuntersuchungen nicht aus. Das gilt insbesondere im Fall von sondenkorreliert erzeugten Defekten.

Die Methoden der Hyperfeinphysik legen aufgrund der "Kurz-sichtigkeit" der Sonden die Definition einer lokalen mikroskopi-schen Defektkonzentration nahe. Für Sonden, die durch eine Störung auf dem nächsten Nachbarplatz im fcc-Gitter durch ei-nen und nur einen Defekt betroffen sind, ergibt sich entspre-chend der möglichen 12 nächsten Nachbarn eine mikroskopische Defektdichte der 1. Koordinationssphäre:

$$C^{K1} = 1/12 = 8.3 \%$$

Entsprechend gilt bei Ausweitung der Definition auf weitere Koordinationssphären allgemein:

$$C^{Kj} = \left(\frac{\text{Anzahl der Defekte}}{\text{Summe der möglichen Positionen}} \right) \text{ innerhalb der Schalen } \leq j$$

Die dabei vorkommenden mikroskopischen Defektdichten innerhalb des Volumens der Sondenempfindlichkeit liegen oberhalb der makroskopisch erreichbaren Sättigungskonzentration.

Andererseits ist der Beitrag der sondenlokalisierten Defekte zur makroskopischen Defektkonzentration wegen der geringen Sondenkonzentration im allgemeinen vernachlässigbar. Bei einer Probenaktivität von $\approx 100 \mu\text{C}$ liegen nur etwa 3×10^{12} aktive Sondenkerne in statistischer Verteilung vor. Das entspricht einer Sondenkonzentration von ca. 6×10^{-3} ppm.

Damit erhält man für den absoluten Anteil der sondenlokalisierten diskreten Störung an der makroskopischen Defektkonzentration

$$c_{\text{diskr}} = f \cdot n_D(\text{diskr}) \cdot c_S$$

$$\approx 10^{-3} \text{ ppm}$$

f = relativer Anteil der
Sonden mit diskreter
Störung

$n_D(\text{diskr})$ = Anzahl der Defekte pro Sonde mit
diskreter Störung
(=1)

c_S = makroskopische Sonden-
konzentration

Eine entsprechende Rechnung für den Beitrag der Defekte, die als Verteilung um die Sonde vorliegen, ergibt

$$c_{\text{Vert}} = (1-f) \cdot n_D(\text{vert}) \cdot c_S$$

$$\approx 1.5 \cdot 10^{-2} \text{ ppm}$$

$n_D(\text{Vert.})$ wird entsprechend
der maximalen Rückstoßenergie
bei der sondenkorrelierten Defekterzeugung mit maximal 3
angenommen.

Für die tieftemperaturbestrahlte Polykristallprobe wurde aus der Änderung des elektrischen Widerstandes der parallel mitbestrahlten $^{\text{nat}}\text{Pd}$ -Referenz eine Frenkelpaarkonzentration von

$$c_{\text{FP}} = 18(2) \text{ ppm} \quad \text{abgeschätzt.}$$

Dieses zeigt, daß die makroskopische Defektkonzentration durch globale Schädigung mit schnellen Neutronen beherrscht wird. Dennoch haben diese statistisch verteilten globalen Schäden noch keinen meßbaren Störeinfluß auf die Sonden. Die Wahrscheinlichkeit, in dem effektiven Sondenvolumen von ca. 500 Atomen einen unkorreliert erzeugten Defekt zu finden, beträgt nur 1 %.

6.3 Defektzuordnung der Sondenstörungen

Eine Zuordnung der beobachteten Einzelfrequenz zu einem bestimmten Defekttyp ist allein mit den Informationen, die die Hyperfeinphysik bietet, noch schwierig.

Die Berechnung von elektrischen Feldgradienten (EFG) ist wegen der komplizierten elektronischen Struktur auch für Störungen in einfachen Kristallgittern sehr unsicher. Es ist bekannt, daß gerade die elektronische Komponente des EFG gegenüber dem Gitteranteil stark ins Gewicht fällt /8, 49-53/. Theoretische Vorhersagen für den EFG mit der Genauigkeit, die für eine Unterscheidung zwischen einer Leerstelle (LS) oder einem Zwischengitteratom (ZGA) nötig wäre, sind daher nicht möglich.

Von experimenteller Seite fehlt in der Hyperfeinphysik bisher die nötige Basis an systematischen Messungen. Immerhin sind bereits an einigen Stellen Vorstöße der mikroskopischen Untersuchungsmethoden in die Defektphysik unternommen worden, wie u.a. DPAD- und DPAC-Experimente nach Kernreaktionen /7, 17, 19/, DPAC nach Ionenimplantation /54-56/ oder Mößbauereffekt nach Neutronen- oder Elektronenbestrahlung /21, 24-26/. Zur Interpretation der beobachteten Defekte werden dabei die Modellvorstellung der Defekterzeugung und das Ausheilverhalten im Vergleich mit Erholungsmessungen des elektrischen Widerstandes herangezogen.

Deutung der Defekte mit Hilfe von Erholungsstufen

Zur Aufklärung des in dieser Arbeit beobachteten Defekts wurde bereits in der Experimentierphase eine Erholungsmessung des elektrischen Widerstandes von Palladium nach Tieftemperatur-Neutronenbestrahlung von Nakagawa et al. /57/ als Orientierungshilfe benutzt (Abb. 6.1, Seite 68). Es wurden im wesentlichen die Erholungsstufen I und III systematisch eingeschachtelt, sowie eine Messung inmitten der Stufe II durchgeführt.

Für die Defektreaktionen in den einzelnen Erholungsstufen existieren im Prinzip zwei Modelle, und zwar von Schilling et al. (Jülich) /58, 59/ und von Seeger et al. (Stuttgart) /60/. Von diesen hat sich das erstere aufgrund eindeutiger experimenteller Befunde /1-3/ inzwischen weitestgehend durchgesetzt. Dieses Modell soll hier nur kurz insoweit skizziert werden, wie es für das Verständnis der weiteren Diskussion notwendig ist. Darüber hinaus werden zwei wichtige Bedingungen diskutiert, die beim Vergleich von makroskopischen Messungen (z.B. Widerstandserholung) und mikroskopischen Messungen (z.B. DPAC) im Rahmen dieses Modells zu beachten sind.

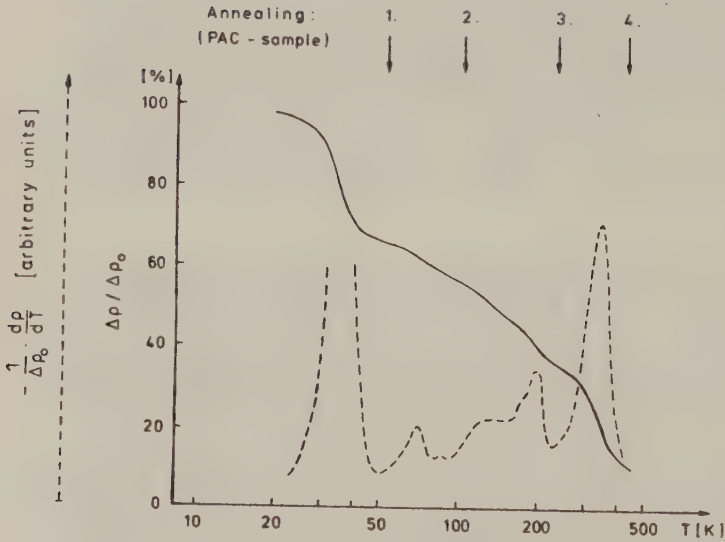


Abb. 6.1 Erholung des elektrischen Widerstandes von Palladium nach einer Hochdosisbestrahlung mit schnellen Neutronen ($D_s = 10^{19} \text{ n/cm}^2$) bei 4.6 K /57/. Die differenzierten Erholungsisochronen sind gestrichelt eingezeichnet. Zum Vergleich mit dem DPAC - Experiment sind die Anlaßtemperaturen der DPAC - Probe durch Pfeile gekennzeichnet.

Das Erholungsmodell

Der Erholung durch thermische Anregung geht ein athermischer Erholungsprozeß, die spontane Rekombination, voraus. Diese Vernichtung von Frenkelpaaren innerhalb eines engbegrenzten Instabilitätsvolumens erfolgt noch während der Defekterzeugung. Die anschließende thermische Erholung ist durch Erholungsstufen gekennzeichnet.

- Stufe I Beweglichkeit von Zwischengitteratomen (ZGA); dadurch erfolgt eine Vernichtung der ZGA mit Leerstellen (LS)
- Die Stufe I ist in Unterstufen aufgeteilt mit folgender Deutung
- I_{A-C} Rekombination eng benachbarter Frenkelpaare.
- I_D Korrelierte Rekombination: Das ZGA führt einen Zufallsweg aus und rekombiniert mit der eigenen LS.
- I_E Unkorrelierte Rekombination: Ausheilung der ZGA mit fremden LS.

Als Konkurrenzprozeß zur Rekombination schließen sich ZGA zu Agglomeraten zusammen oder lagern sich an Fremdatomen (FA) an.

- Stufe II Hier gibt es ebenfalls Unterstufen, von denen zwei besonders wichtig und auch gesichert sind /61/.
- II_B Umordnung eingefangener ZGA aus schwachen Einfangvolumen (shallow traps) in starke Einfangszentren (deep traps).
- II_C Lösung der ZGA aus Einzelhaftstellen (detrapping).
- Stufe III Freie Beweglichkeit von Leerstellen, Anlagerung der LS an Haftstellen sowie Bildung von LS-Agglomeraten.
- Stufe IV Lösung der Leerstellen von Haftstellen und Beweglichkeit von LS-Agglomeraten.
- Stufe V Selbstdiffusion.

Die Temperaturlage der einzelnen Erholungsstufen ist für die verschiedenen Metalle sehr unterschiedlich. Außerdem sind manche Stufen bezüglich Intensität und Temperaturlage sehr stark von der Art der Defekterzeugung und von der Defektkonzentration abhängig. Daher müssen insbesondere für den Vergleich von Ausheilstufen in örtlich mikroskopischen Untersuchungen mit denen in makroskopischen Messungen Vergleichsbedingungen beachtet und gegebenenfalls Korrekturen vorgenommen werden.

Vergleichsbedingungen

1. Temperaturlage der Ausheilstufen

Bei gleicher Anlaßzeit Δt sind einige Erholungsstufen ($I_{D,E}$ und III) in örtlich mikroskopischen Messungen schmaler zu erwarten und ihr Zentrum ist zu tieferen Temperaturen hin verschoben. Dieser Effekt tritt in Stufe $I_{D,E}$ aber nur dann auf, wenn das Zwischengitteratom selbst als Störung neben der Sonde sitzt und nicht, wenn es die Ausheilung mit einer sondennachbarten Leerstelle bewirkt.

Erklärung: Zur Ausheilung durch Dissoziation benötigt der sondenlokalisierte Defekt nur wenige Sprünge (1-5), um sich der Sonde als MeBeffekt zu entziehen ("Sondenkurzsichtigkeit"). In örtlich makroskopischen Messungen sind dagegen je nach Defektkonzentration bis zu ca. 10^5 Sprünge zur Rekombination nötig.

Wie ist ein Vergleich mit makroskopischen Messungen vorzunehmen? Die Erholungsstufen werden durch Ratengleichungen beschrieben /62-64/.

$$(55) \quad - \frac{dc}{dt} = \frac{c}{n} \nu(T)$$

c = Defektkonzentration
 ν = Versuchsfrequenz

$$\text{mit } \nu(T) = \nu_0 \exp\left(\frac{E^M}{kT}\right)$$

E^M = Wanderungsenergie
 des Defekts

Die Ausheilung $-\Delta c/c$ wird durch die temperaturabhängige Sprungfrequenz $\nu(T)$ und die mittlere Anzahl n von Sprüngen bestimmt, die zur Defektvernichtung nötig sind. Durch eine Abhängigkeit der erforderlichen Sprungzahl n von der Defektkonzentration

$$\begin{aligned} &\text{Reaktion 2. Ordnung} \\ &(\text{unkorr. Rekombination}) : n \sim \frac{1}{c} \end{aligned}$$

erhält man für die relative Defektausheilung $-\Delta c/c$

$$(56) \quad -\frac{\Delta c}{c} = \Delta t \cdot c_0 \cdot \nu(T)$$

Das bedeutet bei gleicher Anlaßzeit Δt eine Verschiebung der Stufen zu tiefen Temperaturen mit steigender Defektkonzentration.

$$(57) \quad T_2 = \frac{1}{\frac{1}{T_1} - \frac{k}{E^M} \ln \frac{c_1}{c_2}}$$

Entsprechend werden dosisabhängige Stufenverschiebungen auch in makroskopischen Messungen nachgewiesen (Abb. 6.2, Seite 72).

Stufe I_D : Cu (e^- -Bestrahlung) /65, 66/
 $\Delta T \approx 5^\circ$ bei 40-facher Dosis

Stufe I_E : Pt und Al (e^- -Bestrahlung) /67, 68/
 $\Delta T \approx 4^\circ$ bei 10-facher Dosis

Stufe III: Pt (e^- -Bestrahlung) /69, 70/
 $\Delta T \approx 100^\circ$ bei 400-facher Dosis
 Al (n-Bestrahlung) /63/

Für die Stufe I erfolgt zunächst eine dosisbedingte Verschiebung der Stufe I_E in die Stufe I_D . Die korrelierte Rekombination in Stufe I_D ist primär von der Defektkonzentration unabhängig (Reaktion 1. Ordnung) und bleibt daher zunächst unverschoben. Wenn die Defektdichte durch Berührung der einzelnen Defektkaskaden jedoch gegen den Sättigungswert strebt, ist ei-

ne Unterscheidung von unkorrelierter (I_D) und korrelierter (I_E) Rekombination nicht mehr möglich. Es erfolgt dann eine Verschiebung der gemischten Stufe $I_{D/E}$.

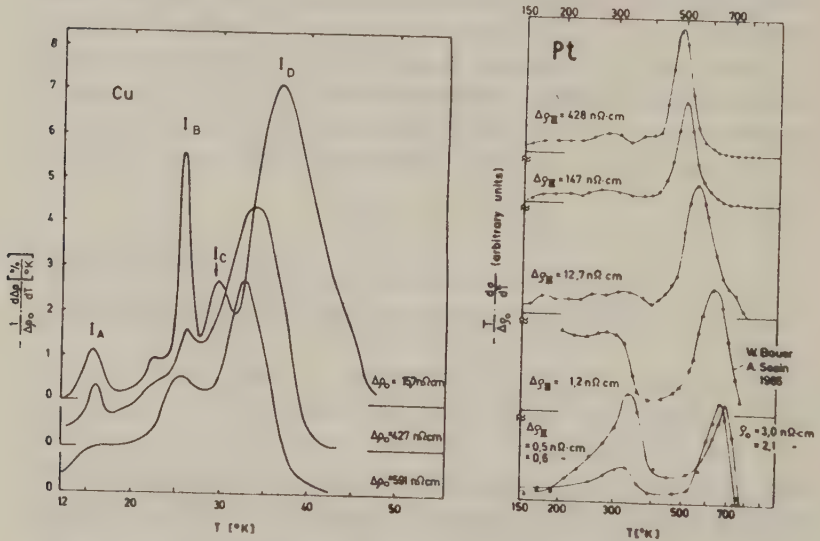


Abb. 6.2 Dosisabhängige Verschiebung der Ausheilstufen I und III des elektrischen Widerstandes (differenzierte Erholungsisochronen) für Kupfer und Platin nach Tieftemperatur-Elektronenbestrahlung /65, 69, 70/.

Der Verschiebungseffekt im DPAC-Experiment durch die Ausheilung über eine Dissoziation des Sonde-Defekt-Komplexes mit 1-5 erforderlichen Sprüngen entspricht beim Vergleich mit dem makroskopischen Experiment also einer sehr hohen Defektdichte. Die hier anzusetzende fiktive mikroskopische Defektkonzentration von einigen Prozent liegt immer noch oberhalb jeder makroskopisch (wegen spontaner Rekombination) nur erreichbaren Sättigungskonzentration ($\approx 0.5 \%$). Immerhin wird aber in einem Hochdosisexperiment fast die gleiche Größenordnung erreicht, so daß für einen Vergleich gilt:

Erholungsstufen in örtlich mikroskopischen Messungen sind in ihrer Temperaturlage mit denen in makroskopischen Hochdosisuntersuchungen etwa vergleichbar. Bei der Temperatur am Ende einer Stufe im Hochdosisexperiment ist auch für das mikroskopische Experiment diese Stufe mit Sicherheit abgeschlossen.

Dieses Kriterium wird beim Vergleich der Daten dieser Arbeit mit den Erholungsstufen des Hochdosis-Neutronenexperiments ($D_s = 10^{19} \text{ n/cm}^2$) von Nakagawa et al. /57/ in Abb. 6.1 angewendet. Die dort gemessene Strahlenschädigung ($\Delta\rho_0 = 1097 \text{ n}\Omega\text{cm}$) entspricht nahezu der Defektsättigung ($\Delta\rho_0 \approx 1400 \text{ n}\Omega\text{cm}$).

2. Fremdatomeinfluß

Die Meßsonden bei mikroskopischen Experimenten sind wie hier meistens Fremdatome (FA). Auf die Defekterzeugung wirkt sich dieses hier nicht aus, denn zu dieser Zeit ist die spätere Sonde noch kein Fremdatom (^{111}Pd zerfällt mit $T_{1/2} = 5.5 \text{ h}$ bzw. 22 m zum ^{111}Ag). Eine Umordnung ist bei tiefer Temperatur nicht möglich. Dagegen kann sich die Fremdatomeigenschaft sehr wohl auf den späteren Ausheilprozeß auswirken, wenn die Sonde selbst im Zwischengitter sitzt bzw. zusammen mit einem angelaagerten Wirtsgitteratom als gemischte Hantel vorliegt. Bei entsprechend hoher Bindungsenergie kann ein solches Zwischengitteratom bis weit über die Stufe I hinaus stabil sein.

Aus Mößbaueruntersuchungen von Mansel et al. /24-26/ ist bekannt, daß in Aluminium Zwischengitteratome an Kobalt-Fremdatomen eingefangen und bis in die Stufe III festgehalten werden; das gleiche Verhalten gilt für Beryllium-FA in Silber. Dagegen lösen sich Zwischengitteratome im Fall Kobalt in Silber bereits bei 104 K, d.h. unterhalb Stufe III, und für Kobalt in Platin und Gold wird gar kein Einfang beobachtet /26/. Offensichtlich besteht also zumindest kein eindeutiger Zusammenhang zwischen den Atomvolumen und der Einfangwahrscheinlichkeit derart, daß kleine Fremdatome in einer Matrix

großer Wirtsatome bevorzugt Zwischengitteratome einfangen. Andererseits liegen für den Fall Silber in Palladium durch das Verhältnis der Atomvolumen ($V(\text{Ag})/V(\text{Pd}) = 1.16$) ohnehin nicht die günstigsten Voraussetzungen für einen großen Einfangradius vor. Dennoch soll wegen der vorhandenen Unsicherheiten neben der Leerstelle auch die Möglichkeit eines Zwischengitteratoms in der Diskussion für den sondenlokalisierten Defekt in dieser Arbeit berücksichtigt werden.

Das Erholungsverhalten der diskreten Quadrupolstörung

Die diskrete Frequenz

Die Frequenzabweichungen nach den einzelnen Temperstufen sind unkorreliert zur Anlaßtemperatur und liegen im Bereich der Meßgenauigkeit. Mit der Änderung der Meßtemperatur von 4.2 K auf 77 K nach der 235 K-Temperung ist prinzipiell (durch Gitterrelaxation) eine geringe Frequenzverschiebung ($< 1\%$) /50/ physikalisch zugelassen; sie liegt ebenfalls innerhalb der Meßfehlergrenzen.

Die Erhaltung der ungedämpften Frequenz bis einschließlich 325 K bedeutet demnach, daß bis zum endgültigen Verschwinden zwischen 235 K und 430 K ein und derselbe Defekttyp in der Sondennachbarschaft saß, und auch keine anderen Defekte zusätzlich angelagert wurden.

Die Amplitude der diskreten Frequenz

Stufe I

Bei der gewählten Anlaßtemperatur 53 K ist nach den diskutierten Vergleichsbedingungen (Seite 70) die gesamte Stufe I mit Sicherheit abgeschlossen. Nach den Ergebnissen der Meßkurvenanpassungen für die tieftemperaturbestrahlte Polykristallprobe nimmt der Anteil f der Kerne mit eindeutigem elek-

trischen Feldgradienten (EFG) eher zu als ab. Inwieweit die errechnete Zunahme von fast 2 % durch physikalische Prozesse bedingt ist, erscheint fraglich; die Frequenzamplituden können innerhalb der Fehlergrenzen zwanglos als gleich angesehen werden. Da in der Stufe I ausschließlich Zwischengitteratome (ZGA) beweglich sind, wäre der eindeutige EFG sonst nur mit einem angelagerten ZGA zu deuten, indem der Anteil f der betroffenen Sonden durch den Einfang frei wandernder ZGA vergrößert würde.

Um diesen Sachverhalt zu klären, wurde die Tieftemperaturbestrahlung des Einkristalls unter anderen Flußverhältnissen durchgeführt. Bei gleicher thermischer Neutronendosis - sie bestimmt schließlich auch die Probenaktivität - wurde die schnelle Neutronendosis gegenüber dem Polykristallexperiment um den Faktor 75 erhöht. Durch diese Erhöhung der globalen Schädigung sollte die Wahrscheinlichkeit für einen eventuellen ZGA-Einfang entsprechend vergrößert werden.

Das Einkristallspektrum zeigt zwar schon bei ungetemperter Probe einen höheren Anteil f (26(2) %) an Kernen mit diskreter Störung, jedoch nimmt dieser in Stufe I eher ab ($f=24(3)$ %) als zu. Es werden also mit Sicherheit keine Zwischengitteratome eingefangen.

Damit und auch im Hinblick auf die Fehlerbreite für f kann die diskrete Störung in beiden Fällen nach Stufe I als unverändert angesehen werden. Für die bei makroskopischen Messungen üblichen hochreinen Proben (99.999 %) wäre das völlige Fehlen einer Ausheilung in Stufe I nach Bestrahlung überhaupt nicht zu verstehen. Wie kann ein solches Verhalten hier im mikroskopischen Experiment erklärt werden?

a) Annahme: der Defekt sei ein Zwischengitteratom (ZGA)

Diese Annahme kann nur gestützt werden durch eine fremdatombedingte Bindungsenergie E^B (Ag-Pd). Sie ergäbe nach Gl. 58

$$(58) \quad E^B = -E^M - kT \ln \frac{n}{\Delta t \nu_0}$$

bei einer Abschätzung von $n=1$ ZGA-Sprung in $\Delta t=10$ min bei $T=53$ K

$$E^B > 0.1 \text{ eV}$$

Die Bindungsenergie eines ZGA-Komplexes Ag-Pd ist nicht bekannt. Die abgeschätzte minimale Bindungsenergie ist aber keinesfalls ungewöhnlich, so daß ein Zwischengitteratom hier nicht ausgeschlossen werden kann.

b) Annahme: der Defekt sei eine Leerstelle (LS)

Die Leerstelle selbst ist in diesem Temperaturbereich unbeweglich. Sie kann nur durch frei bewegliche Zwischengitteratome vernichtet werden, insbesondere durch das eigene (korrelierte Rekombination).

Der fehlende Ausheileffekt ist nur so zu deuten:

- i) Das zugehörige Zwischengitteratom ist relativ weit von der Leerstelle zur Ruhe gekommen (keine Stufe I_{A-C}).
- ii) Die korrelierte Rekombination des ZGA wird stark bzw. total unterdrückt. Dieses ist prinzipiell möglich durch unkorrelierte Rekombination des ZGA mit einer fremden LS oder durch den ebenfalls in Stufe I ablaufenden Konkurrenzprozeß der ZGA-Agglomeration und der Anlagerung an Fremdatomen (Verunreinigungen).

Das Ausmaß dieser Prozesse als Konkurrenz zur korrelierten Rekombination kann über die einzelnen Defektkonzentrationen abgeschätzt werden. Danach sind die unkorrelierte Rekombination der ZGA mit LS aus fremden Stoßsequenzen und die Bildung von ZGA-Agglomeraten gegenüber der Anlagerung an Fremdatomen (FA) vernachlässigbar. Ein Zahlenvergleich verdeutlicht dieses:

In einem Volumen mit $R \approx 20 \text{ a}/\sqrt{2}$ um eine Sonde befinden sich unter insgesamt 50000 Atomen ca. 250 Fremdatome (0.5 %) und nur ein Frenkelpaar aus der globalen Defekterzeugung (20 ppm) durch schnelle Neutronen. Aus dem γ -Rückstoß der Sonde sind im Falle einer Mehrfachdefektproduktion maximal 3 Frenkelpaare hervorgegangen. Eine thermische Leerstellenkonzentration liegt mit $c_{LS}^{th} < 10^{-25}$ völlig außer Betracht. Die Überlappwahrscheinlichkeit des gesamten Sondenvolumens mit einem zweiten beträgt $\approx 5 \times 10^{-4}$.

Dagegen tritt die Anlagerung der Zwischengitteratome an Fremdatome (Verunreinigungen) als ernsthafte Konkurrenz zur korrelierten Rekombination auf. Die Wahrscheinlichkeit für den Einfang von Zwischengitteratomen an Fremdatomen P_{Einf} bzw. für die korrelierte Rekombination P_{korrr} ist /58/

$$(59) \quad P_{\text{Einf}} = \frac{c_{FA} \cdot R_{FA}}{c_{FA} R_{FA} + c_{LS} R_{LS}}$$

$$(60) \quad P_{\text{korrr}} = \frac{R_{LS}}{R_P}$$

für lange Anlaßzeiten Δt
(d.h. $R_{LS} \ll \sqrt{\pi D \Delta t}$)
/64, 71/

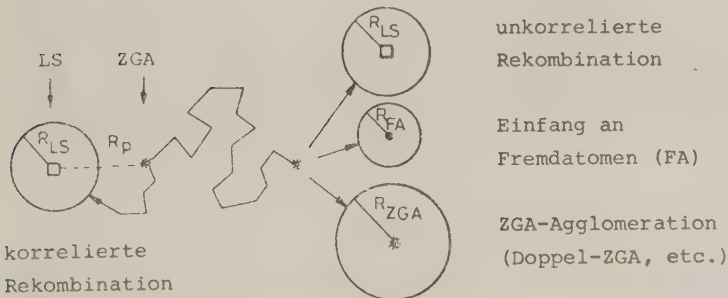


Abb. 6.3 Mögliche Reaktionen eines Zwischengitteratoms in der Erholungsstufe I (R_P - Abstand der Frenkelpartner, R_{LS} - R_{FA} - R_{ZGA} - Reaktions- bzw. Rekombinationsradien; das Eindringen eines ZGA in die zugehörigen Volumen bedeutet eine Reaktionswahrscheinlichkeit $\equiv 1$)

Damit gilt als effektive Wahrscheinlichkeit für die korrelierte Rekombination von ZGA, die dem Einfang an Fremdatomen entronnen sind

$$(61) \quad P_{\text{korr}}^{\text{eff}} = P_{\text{korr}} (1 - P_{\text{Einf}}) = \frac{R_{\text{LS}}}{R_{\text{P}}} \left(1 - \frac{c_{\text{FA}}}{c_{\text{FA}} + \frac{R_{\text{LS}}}{R_{\text{FA}}} c_{\text{LS}}} \right)$$

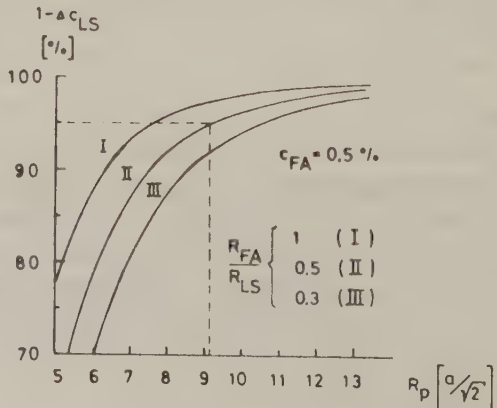
Diese Wahrscheinlichkeit gibt gleichzeitig die effektive Ausheilung Δc_{LS} der Leerstellen für die unterdrückte korrelierte Rekombination an

$$(62) \quad \Delta c_{\text{LS}} = \frac{R_{\text{LS}}}{R_{\text{P}}} \cdot \frac{c_{\text{LS}} N(R_{\text{P}})}{c_{\text{FA}} N(R_{\text{P}}) \frac{R_{\text{FA}}}{R_{\text{LS}}} + c_{\text{LS}} N(R_{\text{P}})}$$

Darin wird mit $N(R_{\text{P}})$ (= Gesamtzahl der Atome im Volumen zu R_{P}) auf die mikroskopische Leerstellendichte normiert, indem für die hier betrachteten Reaktionsvolumen stets $c_{\text{LS}} N(R_{\text{P}}) = 1$ gesetzt wird. Der Reaktionsradius für eine Leerstelle in Palladium ist nicht bekannt, jedoch kann in guter Näherung der Wert von Platin verwendet werden ($R_{\text{LS}} \approx 4.6 \text{ a}$) /71/. Für die unterschiedlichen im einzelnen nicht bekannten Verunreinigungsatome wird ein Einfangradius $R_{\text{FA}} \approx 0.5 - 1 R_{\text{LS}}$ angesetzt. Die Stärke der Unterdrückung ($1 - \Delta c_{\text{LS}}$) der korrelierten Rekombination durch ZGA-Anlagerung an Fremdatome nach (62) ist in Abhängigkeit vom Abstand R_{P} der ZGA-LS-Paare in Abb. 6.4 gezeigt.

Abb. 6.4

Unterdrückung der korrelierten Rekombination durch ZGA-Anlagerung an Fremdatome



Als experimentelle Beobachtungsempfindlichkeit wird eine Defektausheilung $\Delta c_{LS} \leq 5\%$ ($\cong \Delta f = 1\%$) angenommen. Der Kurvenverlauf II für die hier angenommene Verunreinigungskonzentration $c_{FA} \approx 0.5\%$ zeigt eine Erholungsunterdrückung $\geq 95\%$ für LS-ZGA-Abstände $R_p \geq 9 \text{ a}/\sqrt{2}$.

Derartige Abstände sind mit den Erwartungen für die Reichweiten der fokussierenden Ersetzungsstoßfolgen (Kap. 3.3, Seite 33) gut verträglich. Etwa gleiche Abstände R_p werden auch von Schilling und Sonnenberg in Platin nach 3-MeV-Elektronenbestrahlung ermittelt /58/. Bei vergleichbarem maximalem Primärückstoß ($E_{r,max} \approx 130 \text{ eV}$) ergibt sich aus der dort beobachteten ca. 65 %igen Ausheilung in Stufe I_{A-D} ein Abstand $R_p \approx 10 \text{ a}/\sqrt{2}$.

Der fehlende Ausheileffekt für die sondennahen Leerstellen läßt sich durch die fremdatombedingte Unterdrückung der Stufe I also zwanglos erklären.

Stufe II

Nach dem Anlassen der Probe etwa in der Mitte der Stufe II ist die diskrete Störkomponente auf 14 % reduziert. Es hat also eine ca. 25 %-ige Ausheilung stattgefunden. Die nächste Proben temperung am Ende der Stufe II bewirkte keine weitere Ausheilung.

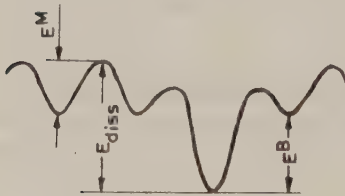
a) Annahme: der Defekt sei ein Zwischengitteratom

Der in Stufe I unter dieser Annahme abgeschätzte Wert der minimalen Bindungsenergie für das Wirtsatom-Fremdatom-Paar müßte für eine beginnende Erholung bei 105 K nunmehr heraufgesetzt werden. Die Tatsache der nur teilweisen Ausheilung kennzeichnet diese gewählte Anlaßtemperatur bzw. eine daraus errechnete Bindungsenergie damit als kritische Schwellwerte. Die Dissoziation des (Pd-Ag)-Zwischengitteratomkomplexes muß über das Wegspringen des Pd-Atoms von der Ag-Sonde erfolgen; im um-

gekehrten Fall bleibt die Sondenstörung unbeeinflusst. Unter der Annahme einer symmetrischen Sprungwahrscheinlichkeit des Defekts ist die Wahrscheinlichkeit für die Erholung dieses Defekttyps

$$(63) \quad P_{\text{diss}} = 1 - 0.5^n \quad n = \text{Sprungzahl}$$

Die Rücksprungwahrscheinlichkeit kann für die erforderliche Genauigkeit dieser Abschätzung vernachlässigt werden. Folglich ist für eine 25 %-ige Ausheilung eine mittlere Sprungzahl $n \approx 0.4$ nötig. Daraus ergibt sich eine effektive Dissoziationsenergie für $T = 105 \text{ K}$: $E_{\text{diss}} = 0.34 \text{ eV}$



$$(64) \quad E_{\text{diss}} = -kT \ln \frac{n}{600 \nu_0}$$

Abb. 6.5 Potentialverlauf um einen gebundenen Defekt

Die Ausheilung müßte damit konsequent fortgesetzt werden:

110 K	$n = 2.3$	80 % Ausheilung
115 K	$n = 10$	100 % Ausheilung

Eine teilweise Erholung bei 105 K ohne weitere Änderung bis 235 K ist mit der Dissoziation des beobachteten Defekts also nicht zu erklären. Damit fällt in dieser Stufe eine klare Entscheidung gegen das Zwischengitteratom als Deutung des sondennahen Defekts.

b) Annahme: der Defekt sei eine Leerstelle

Eine Dissoziation des Sonde-Defekt-Paares kommt als Ausheilmechanismus in Stufe II für die Leerstelle ohnehin nicht in Frage, da diese hier unbeweglich ist. Die Leerstelle kann nur durch heranwandernde Zwischengitteratome vernichtet werden.

Die nur teilweise Ausheilung in der Mitte der Stufe II ist ein starker Hinweis auf eine Rekombination durch eine Reaktion 2. Ordnung. Die für die Stufe II typische Umlagerung der Zwischengitteratome bedeutet eine Lösung (detrapping) von schwachen Haftstellen (shallow traps) und erneuten Einfang in starken Einfangzentren (deep traps), wie ZGA-Clustern, Versetzungen und Korngrenzen. Dabei werden auf dem Zufallsweg der zwischenzeitlich hochbeweglichen Zwischengitteratome (10^8 Sprünge/sec bei 100 K) in gewissem Umfang auch Leerstellen ausgeheilt. Eine quantitative Analyse der beobachteten Teilausheilung ist nicht möglich; über die in der Probe enthaltenen Verunreinigungsatome ist für eine Abschätzung der Bindungsenergien zu wenig bekannt. Die immerhin 25-prozentige Erholung deutet jedoch darauf hin, daß die eingefangenen Zwischengitteratome unweit der sondengebundenen Leerstelle freigesetzt wurden. Dieses ist in guter qualitativer Übereinstimmung mit der Vorstellung und Abschätzung der unterdrückten Erholung der Leerstellen in Stufe I.

Stufe III

In der Erholungsstufe III wird eine vollständige Ausheilung der sondennahen Defekte (diskrete Frequenz) und ein teilweises Erholen der Defekte in der weiteren Sondenumgebung (abfallende Spektrenkomponente) beobachtet.

Läge nicht für ein Zwischengitteratom ein völlig unverständliches Verhalten in der Stufe II vor, wäre prinzipiell auch bis in die Stufe III hinein noch ein stabiles, eingefangenes ZGA denkbar (siehe Vergleichsbedingungen, Seite 73). Eine Ausheilung könnte dann einerseits durch nunmehr frei bewegliche Leerstellen erfolgen, indem diese an die gebundenen ZGA heranwandern und sie vernichten. Dieser Mechanismus würde nicht unbedingt zur vollständigen Ausheilung führen, weil die LS ebenso an Versetzungen und Korngrenzen eingefangen werden. Würde die ZGA-Ausheilung andererseits über eine Dissoziation

geschehen, die zufällig in die Stufe III fällt, entspräche das einer effektiven Dissoziationsenergie

$$0.8 < E_{\text{diss}} < 1.3 \text{ eV}$$

Ein eindeutiger Ausschluß des ZGA-Komplexes Pd-Ag könnte damit nicht erfolgen.

(Zum Vergleich: $E_{\text{diss}} \approx 0.5 \text{ eV}$ für Mg in Al /64/).

Dagegen ist die Deutung des sondenlokalisierten Defekts als Leerstelle angesichts der Zuordnung der Stufe III zur freien Beweglichkeit von Leerstellen die nächstliegende Erklärung. Eine derartige Ausheilung durch Dissoziation erfolgt auf jeden Fall vollständig. Sie trifft in gleicher Weise für die Leerstellen in der weiteren Umgebung der Sonde zu, die damit eine Dämpfungsschwächung für die exponentielle Spektrenkomponente herbeiführen. Aus der beobachteten Ausheilung sollte eigentlich gleichzeitig die Bildung eines konstanten Spektrenuntergrundes folgen, der die nunmehr ungestörten (kubischen) Sondenumgebungen repräsentiert. Dieser Untergrund ist bei gleichzeitiger Anwesenheit einer Verteilung von sehr kleinen Störungen nur mit sehr guter Meßstatistik zu erfassen. Dieses ist mit der in dieser Arbeit verwendeten Winkelkorrelationskaskade kaum zu erreichen.

Defektausheilung oberhalb Stufe III

Der über die Stufe III hinaus beständige Rest an schwachen Sondenstörungen entspricht der bei DPAC/DPAD nach Kernreaktionen üblichen Beobachtung /7, 17-20/. Diese Störungen müssen Agglomeraten von Leerstellen oder Zwischengitteratomen zugeordnet werden, über deren Struktur mit dieser DPAC-Messung keine genaue Aussage gemacht werden kann.

Die Richtung des Defekts zur Sonde

Die Interpretation des gemessenen eindeutigen elektrischen Feldgradienten als Leerstelle auf dem nächsten Nachbarplatz zur Sonde wird sowohl vom Ausheilverhalten als auch von der Modellvorstellung über die Defekterzeugung weitgehend favorisiert.

Diese Defektdeutung kann mit den Mitteln der Hyperfeinphysik untermauert werden, indem man mit einer DPAC-Messung am Einkristall die Lage des EFG im Kristallgitter feststellt.

Für ein Zwischengitteratom im kubisch flächenzentrierten Gitter (fcc) sind im Prinzip die 6 in Abb. 6.6 gezeigten Lagen zu diskutieren.

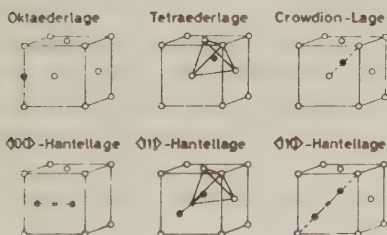


Abb. 6.6 Mögliche Lagen von Zwischengitteratomen in kubisch-flächenzentrierten Gittern. (Ref. 2)

Hiervon wurden durch Messung der diffusen Röntgenstreuung (Huang-Gebiet) von Ehrhard und Schilling an Aluminium /1/ alle bis auf die Oktaeder-, Tetraeder- und $\langle 100 \rangle$ -Hantel-Lage ausgeschlossen. Von diesen haben die Oktaeder- und Tetraederlagen kubische Symmetrie und damit einen verschwindenden EFG. Eine DPAC-Messung würde für diese ZGA-Lagen also keine gestörte Wechselwirkung zeigen, wenn die Sonde selbst im Zwischengitter sitzt, wohl aber, wenn sie sich auf einem substitutionellen Gitterplatz neben einem derart angelagerten Wirts-

gitter-ZGA befindet. Haubold hat mit Hilfe der diffusen Röntgenstreuung im Zwischenreflexgebiet gezeigt, daß für Aluminium die $\langle 100 \rangle$ -Hantellage vorliegt /2, 3/. Diese Lage wird auch durch Computersimulationen für Kupfer von Scholz und Lehmann /4/ als einzige stabile ZGA-Lage ermittelt. Nach Untersuchungen der mechanischen Relaxation an FeAl von Robrock et al. gilt diese Lage auch für gemischte Hanteln Fe-Al /5/.

Für ein Zwischengitteratom müßte demnach in dieser Arbeit eine gemischte $\langle 100 \rangle$ -Hantel angenommen werden, wobei die Asymmetrie für den Fall Ag-Pd sehr gering ist.

Eine Leerstelle kann dagegen sowohl in $\langle 100 \rangle$ -Richtung als zweitnächster Nachbar als auch in $\langle 110 \rangle$ -Richtung als nächster Nachbar zur Sonde vorliegen.

Wie die Gegenüberstellung der theoretischen Störfunktionen in Abb. 5.6, Seite 60 zeigt, sind die DPAC-Spektren bei einer Detektorstellung in den $\langle 100 \rangle$ und $\langle 010 \rangle$ -Achsen des Einkristalls sehr empfindlich auf die Unterscheidung eines EFG in $\langle 100 \rangle$ - oder $\langle 110 \rangle$ -Richtung.

Die Meßkurvenanpassung kennzeichnet den Defekt in der Richtung $\langle 110 \rangle$ und bestätigt damit die Leerstelle als nächsten Nachbarn zur Sonde.

6.4 Rückschlüsse auf den Mechanismus der Defekterzeugung

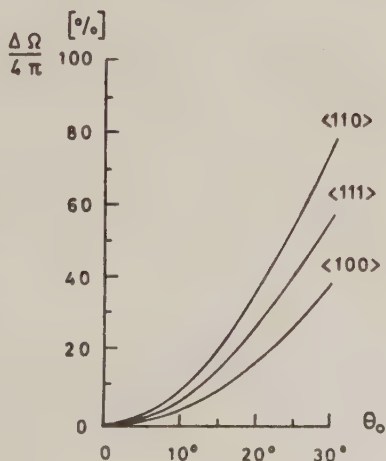
Die experimentellen Ergebnisse der diskreten Sondenstörungen bestätigen weitgehend die Vorstellungen über den in Kap. 3.3 beschriebenen Verlagerungsprozeß und geben mit der unterdrückten korrelierten Rekombination einen indirekten Hinweis auf die Mindestreichweiten der Stoßfolgen. Dagegen sind die beobachteten hochstabilen Defektagglomerate als sondenkorreliert erzeugte Defekte schwer zu verstehen.

Außer den Ersetzungsstößen in $\langle 110 \rangle$ -Richtung sollten prinzipiell auch Verlagerungen in $\langle 100 \rangle$ -Richtung stattgefunden haben. Von Leerstellen in dieser Richtung würde eine etwa 3- bis 5-fach schwächere Wechselwirkung erwartet /54, 72/. Solche ebenfalls diskreten Störungen werden in den vorliegenden Meßergebnissen nicht ausgeschlossen; einen direkten Hinweis auf diesen Störeffekt können die DPAC-Spektren wegen zu schlechter Meßstatistik jedoch nicht liefern.

Zur Erklärung der beobachteten Wahrscheinlichkeit $P(E)^{\langle 110 \rangle} = f = 20-25\%$ für eine Sondenkernverlagerung in $\langle 110 \rangle$ -Richtung ist zunächst zu prüfen, wie groß die maximale Winkelabweichung θ_0 des primären Stoßes von der $\langle 110 \rangle$ -Kristallachse sein darf, um noch einen Ersetzungsstoß auf einen Gitterplatz in dieser Richtung zu gewährleisten. Hierzu sind in Abb. 6.7 die Raumwinkelanteile der Öffnungskegel um verschiedene Gitterrichtungen in Abhängigkeit vom halben Öffnungswinkel θ_0 aufgetragen. Mit der gemessenen Verlagerungswahrscheinlichkeit $P(E)^{\langle 110 \rangle}$ kann daraus unabhängig vom Spektrum der Rückstoßenergien geschlossen werden, daß für $E_r > E_d(\langle 110 \rangle)$ mindestens bis zu Winkelabweichungen von $\theta_0 = 15 - 17^\circ$ noch eine Verla-

Abb. 6.7

Raumwinkelanteil der Verlagerungen in den Richtungen $\langle 110 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ und $\langle 100 \rangle$ bei zugelassenen Winkelabweichungen θ_0 des primären Rückstoßes von diesen Kristallachsen.



gerung in $\langle 110 \rangle$ -Richtung stattgefunden hat. Sehr wahrscheinlich sind aber noch Verlagerungen bei Abweichungen bis zu $\theta_0 = 20-25^\circ$ möglich, wie es auch die Computersimulationen von Gibson et al. zeigen /6/. Der entsprechende Raumwinkelanteil von 40 - 60 % ist einer maximal zu erreichenden Verlagerungswahrscheinlichkeit $P(E)^{\langle 110 \rangle}$ gleichzusetzen. Durch den Überlapp der Öffnungskegel in Abb. 6.7 wird es für größere Winkel θ_0 zumindest in der (100)-Ebene auch Ersetzungsstöße in $\langle 100 \rangle$ -Richtungen geben. In den anderen Stösebenen hängt es sehr stark von der Rückstoßenergie ab, ob bereits eine Verlagerung in die 24 $\langle 211 \rangle$ -Richtungen (30° gegen $\langle 110 \rangle$) bzw. die 8 $\langle 111 \rangle$ -Richtungen (35° gegen $\langle 110 \rangle$) erfolgt, oder ob das Primäratom auf seinen Ursprungsplatz zurückfällt.

Der im Experiment effektiv erreichte $\langle 110 \rangle$ -Verlagerungsanteil beträgt etwa das 0.3- bis 0.5-fache des oben abgeschätzten maximal möglichen Wertes. Eine Erklärung ist im Prinzip an Hand einer Verteilungsfunktion für die Sondenkern-Rückstoßenergien möglich. Dazu müssen die Rückstoßimpulse der γ -Zerfälle aus den einzelnen Zerfallskaskaden ohne Richtungskorrelation addiert werden, wobei vorausgesetzt wird, daß das gestoßene Sondenatom die Folge der Einzelimpulse für seine Verlagerung in 10^{-13} - 10^{-12} sec als "gleichzeitig" empfindet. Diese Bedingung ist sicher nicht generell für eine γ -Kaskade erfüllt, so daß in einigen Fällen die Rückstöße aus einzelnen γ -Übergängen isoliert zu betrachten sind.

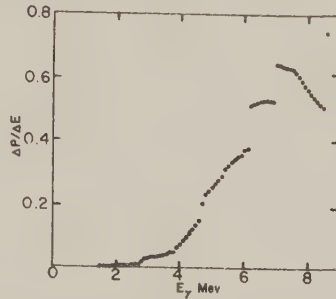
Da das Zerfallsschema für ^{111}Pd nach Neutroneneinfang nicht bekannt ist, kann eine Rückstoßenergie-Verteilung nur sehr grob beschrieben werden. Hierzu wird ein Vergleich mit dem ausführlich untersuchten Zerfall von ^{36}Cl nach (n, γ) -Reaktion vorgenommen.

Für diesen Fall wurde von Hsiung et al. /73/ die Verteilung $\Delta P / \Delta p_\gamma$ der resultierenden γ -Impulse $\vec{p}_\gamma = \sum_i \vec{p}_\gamma^i$ durch einen dreidimensionalen "random walk"-Prozeß berechnet. Die über 14 verschiedene Kaskaden summierte Wahrscheinlichkeitsverteilung

$\Delta P / \Delta E$ ist in Abb. 6.8 für die resultierenden γ -Energien dargestellt.

Abb. 6.8

Wahrscheinlichkeitsverteilung der resultierenden γ -Energien aus 14 γ -Kaskaden nach der Reaktion $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$ (aus Ref. 73)



Überträgt man diese Verteilung mit dem Verhältnis der maximalen γ -Energien ($E_{\gamma,\max}(^{111}\text{Pd}) / E_{\gamma,\max}(^{36}\text{Cl}) \approx 0.7$) auf den Fall ^{111}Pd , so ergibt sich mit Gl. 45

$$E_r = \frac{E_\gamma^2}{2M_c^2}$$

bzw. aus Abb. 3.6 (Seite 34) für eine Verteilung $\Delta P / \Delta E_r$ des resultierenden Rückstoßes eine mittlere Rückstoßenergie $\bar{E}_r \approx 100$ eV. Wird für erfolgreiche Verlagerungen in $\langle 110 \rangle$ -Richtung unter Berücksichtigung der Beziehung $E_r = E_{r,\max} \cos^2 \theta_o$ und der genannten maximal zulässigen Winkelabweichung $\theta_{o,\max} \approx 25^\circ$ ein Rückstoßenergiebereich $E_{d,\min} < E_r < 2-3 E_{d,\min}$ angesetzt, kann die gemessene Verlagerungswahrscheinlichkeit $P(E) \langle 110 \rangle$ innerhalb eines Fehlerintervalls von etwa -50 % bis +70 % bestätigt werden. Die Fehler werden dabei im wesentlichen durch die Annahme des effektiven Rückstoßenergiebereichs und die Breite der Wahrscheinlichkeitsverteilung für die resultierenden γ -Rückstoßenergien bestimmt. Die Verteilungsbreite ist ein Maß für die Schrittweite (Niveaudichte) in der γ -Kaskade und daher eine individuelle Kerneigenschaft, die für den schweren gu-Kern ^{111}Pd anders zu erwarten ist als für den leichten uu-Kern ^{36}Cl .

6.5 Übertragbarkeit der Defektzuordnung auf andere Experimente

Die in dieser Arbeit erfolgte Zuordnung einer Quadrupolkopplungsfrequenz bzw. des entsprechenden EFG zu einer Einzelleerstelle im kubisch flächenzentrierten (fcc)-Gitter liefert einen Beitrag zur Erklärung weiterer Messungen an Defekten mit der DPAC (DPAD)-Methode.

Eine direkte quantitative Übertragung der Meßergebnisse und ihrer Deutung auf andere Fälle ist nur in sehr engen Grenzen möglich. Sie beschränkt sich in jedem Fall auf fcc-Gitter. Wie bereits aus Messungen in nichtkubischen ungestörten Gittern bekannt ist /74, 75/, muß bei verschiedenen Sonden-Wirtsgittersystemen mit starken Abweichungen gerechnet werden.

Zum Vergleich mit den Ergebnissen dieser Arbeit werden im folgenden einige DPAC / DPAD-Experimente mit dem gleichen Sondenkern aber zum Teil unterschiedlichen fcc-Matrizen und anderen radioaktiven Mutterisotopen aufgeführt (Tab. 6.1). Bei diesen Messungen wurden ebenfalls diskrete Wechselwirkungsfrequenzen gefunden und Punktdéfekten zugeschrieben. In allen Fällen erfolgte die Erzeugung der Defekte zwar auch sondenkorieliert, jedoch auf eine im Vergleich zur (n, γ)-Reaktion "unsanfte" Art mit Rückstoßenergien von 80 keV bis ca. 1 MeV. Entsprechend komplex sind die Defektstrukturen zu erwarten.

Die unterschiedlichen Ergebnisse aus den Messungen am gleichen Sonde-Matrix-System $^{111}\text{InAg}$ über die gleiche Kernreaktion zeigen, daß dort mit Sicherheit nicht die gleichen Defektarten nachgewiesen wurden /17-20/. Die Ergebnisdifferenzen sind besonders unverständlich innerhalb der Messungen von Behar und Steffen. Die von Thomé und Bernas beobachtete Einzelfrequenz /19, 20/ kommt der in dieser Arbeit gemessenen sehr nahe. Hier ist noch am ehesten zu vermuten, daß auch Einzelleerstellen beobachtet wurden. Einerseits verschwindet der Meßeffect durch Temperung zwischen 280 K und 420 K (Stufe III),

Autoren	Behar u. Steffen	Thomé u. Bernas	Müller et al.	Bertschat et al.	diese Arbeit
Meßmethode	D P A C	D P A C	D P A C	D P A D	D P A C
Sonde (Mutteraktivität)	^{111}Cd (^{111}In)	^{111}Cd (^{111}In)	^{111}Cd (^{111}In)	^{111}Cd	^{111}Cd (^{111}Ag)
Matrix	Silber	Silber	Platin	Palladium	Palladium
Erzeugung von Defekt und Sonde	^{108}Ag ($\alpha, 2n$) ^{111}In	^{108}Ag ($\alpha, 2n$) ^{111}In	Ionenimplantation ^{111}In	^{108}Pd (α, n) ^{111}Cd	^{110}Pd (n, γ) ^{111}Pd
Einschußenergie	22 - 45 MeV	28 MeV	80 keV	13 MeV	thermisch
mittlere Rückstoßenergie	≈ 1 MeV	≈ 1 MeV	80 keV	200 - 800 keV	≈ 100 eV
Bestrahlungs- temperatur	293 K	80 K	293 K	20 - 410 - 310 K 1720 K	4.6 K
Meßtemperatur	293 K	80 K	293 K	20 - 410 - 310 K 1720 K	4.2 K 77 K
Anlastemperatur	293 K 873 K	150 - 420 - 280 K 520 K	293 K 380 K 600 K	20 - * 310 K 1720 K	4.6 - 105 K 235 K 430 K
diskr. Störanteil f [%]	3	5.3 (1.7)	≈ 15	3.5 (1.0)	19 (1)
$\frac{e^2 q Q}{h}$ [MHz]	166 (2)	122 - 148	≈ 5 28 (3) ≈ 110	87 (2)	86.5 (1.5)
Referenz	17	18	17, 18	19, 20	—

* Die Anlastzeit beträgt hier nur ca. 50 Nanosekunden.

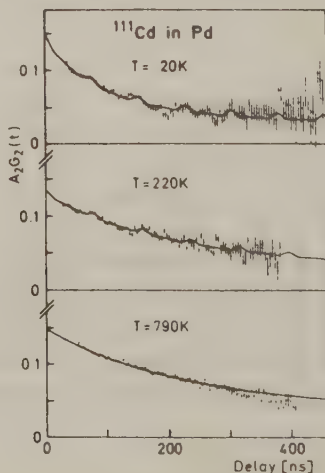
Tab. 6.1 Datenvergleich von mikroskopischen Defektuntersuchungen an verschiedenen Wirtsgitter-Sonde-Systemen bei unterschiedlicher Defekt- und Sondenerzeugung.

andererseits wird eine Ausheilung durch Erhöhung der Bestrahlungsdosis erreicht. Da bei der Bestrahlungs- und Meßtemperatur 80 K nur Zwischengitteratome beweglich sind, deutet das auf eine Ausheilung von sondenlokalisierten Leerstellen durch heranwandernde ZGA hin.

Die deutlichste diskrete Wechselwirkung wird von Müller et al. in Platin gemessen /54, 55/. Zwischen den beobachteten eindeutigen EFG besteht ein Verhältnis von etwa 2:1. Damit und aufgrund ihres Ausheilverhaltens wird die hohe Frequenz (≈ 210 MHz) einer Doppelleerstelle und die niedrige Frequenz (≈ 110 MHz) einer Einzelleerstelle zugeordnet. Diese Deutung ist im Einklang mit den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit. Die relativ geringe Differenz der Wechselwirkungsfrequenzen in den beiden Experimenten unterstreicht für diesen Fall die gute Vergleichbarkeit der beiden Wirtsmatrix-Metalle Pt und Pd, von der auch in dieser Arbeit an einigen Stellen Gebrauch gemacht wurde.

Eine eindeutige und direkte Vergleichsmöglichkeit der Ergebnisse dieser Arbeit ist mit denen aus dem DPAD-Experiment von Bertschat et al./7/ gegeben; es liegt die gleiche Sonde-Wirtsgitter-Kombination vor. Die gemessenen Wechselwirkungsfrequenzen sind innerhalb der Fehlergrenzen identisch. Es sollte damit auch der gleiche Defekt - die Einzelleerstelle - vorliegen (Abb. 6.9).

Abb. 6.9
DPAD - Störampplituden
von ^{111}Cd in Palladium
nach der Reaktion
 $^{108}\text{Pd} (\alpha, n) ^{111}\text{Cd}$
(Ref. 7)



Bei der DPAD-Messung wurde eine Ausheilung der diskreten Störfrequenz etwa im gleichen Temperaturintervall (310 K - 410 K) beobachtet wie beim (n,γ)-DPAC-Experiment. Dennoch liegt darin zunächst ein Widerspruch im Ausheilverhalten des Defekts. Die Erholungstemperaturen sind nicht direkt vergleichbar, sondern müssen transformiert werden. In der Reihe der sonst hier verglichenen DPAC-Messungen ist das DPAD-Experiment die einzige "in beam"- bzw. "on line"-Messung. Dabei sind Bestrahlungs-, Anlaß- und Meßtemperatur zwingend identisch. Durch die "on line"-Meßeigenschaft der DPAD läuft die Beobachtungszeit (Lebensdauer der ^{111}Cd -Sonde wie bei DPAC) in direktem Anschluß an die Defekt- und Sondenerzeugung ab und läßt daher keine makroskopische Anlaßzeit zu. Die meßtechnisch bedingte "mikroskopische Anlaßzeit" betrug bei diesem DPAD-Experiment unveränderbar $\Delta t' \approx 50$ ns. Durch die gegenüber makroskopischen Anlaßzeiten $\Delta t = 10$ min. geringere mittlere Sprungzahl der Defekte wird die im (zeitlich!) makroskopischen Anlaßexperiment beobachtete Ausheiltemperatur T hier zu einer höheren Temperatur T' verschoben. Nach einer entsprechenden Transformation der Temperaturskala

$$(65) \quad T' = \frac{1}{\frac{1}{T} - \frac{k}{E_{\text{diss}}} (\ln \Delta t - \ln \Delta t')}$$

wurde die beobachtete Ausheilung der diskreten Störung von den Autoren der Stufe II zugeordnet. Die daraufhin vorgenommene naheliegende Deutung des Defekts als Zwischengitteratom ist jedoch nicht zwingend und wird durch die hier durchgeführten DPAC-Untersuchungen widerlegt.

Nach der Modellvorstellung bei der Abbremsung hochenergetischer Rückstoßatome befindet sich das zur Ruhe gekommene Primäratom (Sonde) am Rande der verdünnten Seegerschen Zone (depleted zone), und zwar möglicherweise direkt benachbart zu einem Einzeldefekt (diskrete Störung) aufgrund des letzten inzwischen niederenergetischen Ersetzungsstoßes. Ist dieser sondenlokalisierte Defekt eine Leerstelle, so kann sie in Stufe II leicht

durch Auflösung kleiner ZGA-Agglomerate aus der benachbarten ausgedehnten und mit Zwischengitteratomen angereicherten "Seeger-Randzone" vernichtet werden. Dieses würde den in Stufe II beobachteten Erholungseffekt durch eine Reaktion 2. Ordnung zwanglos erklären.

In gleicher Weise gibt die Seegerzone bzw. der vorangegangene "thermal spike" eine qualitative Erklärung dafür, daß in dem "in beam"-Experiment von vornherein eine geringere Anzahl von Sondenatomen mit diskreter Störung beobachtet wird als in der (n,γ) -DPAC-Messung. Die Abkühlung der lokalen Aufheizung (thermal spike) in einer Defektkaskade in $\approx 10^{-11}$ s nach deren Ausbildung besteht in dem Abbau der lokalen Defektübersättigung in diesem Gebiet mindestens auf eine lokale Sättigungskonzentration. Diese stellt sich zwangsläufig durch Überlappung der spontanen Rekombinationsvolumen ein, und selbstverständlich ist auch die engere Umgebung einiger primärer Rückstoßatome (Sonden) am Rande der zurückbleibenden Seegerzone von diesem Ausheilprozeß betroffen.

Diese Erklärung für das Verhalten der diskreten Sondenstörung im Falle des "in beam"-Experiments kann nur qualitativ gegeben werden. Die Verlagerungskaskaden nach hochenergetischen Rückstößen besitzen für mikroskopische Analysen eine zu komplizierte Struktur (siehe auch Computersimulationen von Doran /76/).

Umso wichtiger ist es daher, mit vergleichbaren Experimenten und Meßmethoden zunächst unter definierten Verhältnissen bezüglich der Defekterzeugung Erkenntnisse über den Defekttyp und seine Lage zum Sondenkern zu sammeln.

Die vorliegende Arbeit hat gezeigt, daß dieses insbesondere durch Messungen an einfachen sondenlokalisierten Defekten nach einer Neutroneneinfangreaktion möglich ist. Zur Untersuchung sind DPAC sowie Mößbauereffekt als mikroskopische Meßmethoden denkbar gut geeignet. Allerdings lassen sich die Ergebnisse und ihre Deutungen nur für wenige spezielle Fälle wie hier im letzten Vergleich als "Fingerabdruck" eines Defekttyps direkt quantitativ auf andere Messungen übertragen.

Literaturverzeichnis

- 1 P. Ehrhard and W. Schilling, Phys. Rev. B8, (1973) 2604
- 2 G. Haubold, Bericht der KFA Jülich, Jül-1090-FF (1974)
Dissertation TH Aachen
- 3 P. Ehrhard, G. Haubold, and W. Schilling, Festkörperprobleme XIV (1974) 87
- 4 A. Scholz and Chr. Lehmann, Phys. Rev. B6, (1972) 813
- 5 K.H. Robrock and L.E. Rehn, 6th International Conference
on Internal Friction and Ultrasonic Attenuation in Solids
(1977) Tokyo, Japan
- 6 J.B. Gibson, A.N. Goland, M.Milgram, and G.H. Vineyard,
Phys. Rev. 120 (1960) 1229
- 7 H. Bertschat, H. Haas, F. Pleiter, E. Recknagel,
E. Schlodder, and B. Spellmeyer, Phys. Rev. B12, (1975) 1
E. Schlodder, Diplomarbeit FU Berlin 1975
- 8 J. Bleck, R. Butt, H. Haas, W. Ribbe, and W. Zeitz,
Phys. Rev. Lett. 29 (1972) 1371
- 9 H. Bertschat, J. Christiansen, H.-E. Mahnke, E. Recknagel,
G. Schatz, R. Sielemann, and G. Witthuhn,
Phys. Rev. Lett. 25 (1970) 102
- 10 H. Bertschat, O. Echt, H. Haas, F. Pleiter, E. Recknagel
E. Schlodder, and B. Spellmeyer, in: Internat. Conference
on Hyperfine Interactions in Nuclear Reactions and Decay,
(1974) Uppsala, Sweden
- 11 J. Friedel in "Vacancies and Interstitials in Metals"
ed. A. Seeger et al. North-Holland Publ. (1970) 787
- 12 W. Kohn and S.H. Vosko, Phys. Rev. 119 (1960) 912
- 13 J. Friedel, Suppl. Nuovo Cimento 2 (1958) 287
J. Friedel, Phil. Mag. 43 (1952) 153
- 14 G. Schnakenberg, R.T. Schumacher, Phys. Rev. B7, (1973) 2292
- 15 R.M. Steffen and H. Frauenfelder in Ref. 77

- 16 F-coefficients in Appendix 3 of Ref. 77
- 17 M. Behar and R.M. Steffen, Phys. Rev. C7 (1973) 788
- 18 M. Behar and R.M. Steffen, Phys. Rev. Lett. 29 (1972) 1505
- 19 L. Thomé and H. Bernas, Phys. Rev. Lett. 36 (1976) 1055
- 20 H. Bernas, priv. Mitteilung
- 21 G. Vogl, A. Schaefer, W. Mansel, J. Prechtel, and W. Vogl, Phys. Stat. Sol. (b) 59 (1973) 107
- 22 H. Rinneberg and H. Haas, 4th International Conference on Hyperfine Interactions, (1977) Madison, U.S.A.
- 23 C. Hohenemser, A. Ahrends, and H. de Waard, Phys. Rev. B11 (1975) 4522
- 24 W. Mansel, G. Vogl, and W. Koch, Phys. Rev. Lett. 31 (1973) 359
- 25 G. Vogl, W. Mansel, and W. Vogl, J. Phys. F 4 (1974) 2321
- 26 W. Mansel, Dissertation TU München 1975
- 27 J.R. Beeler, Phys. Rev. 150 (1966) 470
- 28 J. Wurm, Bericht der KFA Jülich, Jül-581-FN (1969)
- 29 P. Jung, R.L. Chaplin, H.J. Fenzl, K. Reichelt, and P. Wombacher, Phys. Rev. B8 (1973) 553
- 30 P. Jung, Ferienkurs der KFA Jülich (1975)
- 31 C.M. Jeminez, L.F. Lowe, E.A. Burke, and C.H. Sherman, Phys. Rev. 153 (1967) 735
- 32 W.A. Harrison and F. Seitz, Phys. Rev. 98 (1955) 1530
- 33 W.S. Snyder and J.S. Neufeld, Phys. Rev. 97 (1955) 1636
- 34 G.H. Kinchin and R.S. Pease, Rep. Prog. Phys. 18 (1955) 1
- 35 Ch. Lehmann, Nukleonik 3 (1961) 1
- 36 R.H. Silsbee, J. Appl. Phys. 28 (1957) 1246
- 37 Ch. Lehmann and G. Leibfried, Z. Phys. 162 (1961) 203
- 38 G. Duesing and G. Leibfried, Phys. Stat. Sol. 9 (1965) 463

- 39 G. Leibfried, Bestrahlungseffekte in Festkörpern, Teubner-Verlag, Stuttgart 1965
- 40 C. Erginsoy, G.H. Vineyard, and A. Shimizu, Phys. Rev. 133 (1964) A595
- 41 L.T. Chadderton, Radiation Damage in Crystals, J. Wiley and Sons Inc. N.Y. (1965) 61
- 42 H. Haas and D.A. Shirley, J. Chem. Phys. 58 (1973) 3339
- 43 T.R. Gerholm, Z.H. Cho, L. Eriksson, L. Gidefeld, and B.-G. Pettersson, Nucl. Instr. Meth. 100 (1972) 33
- 44 P. Abend, J.B. Bossel, R. Butt, R. Conrad, K.H. Degenhardt, G. Derichsweiler, H.U. Eichner, H. Haas, H. Klessmann, H. Kluge, M. Kubitz, H. Pangritz, and W. Woletz, Bericht des HMI Berlin, HMI-B 145 (1974)
- 45 K. Alder, H. Albers-Schönberg, E. Heer, and T.B. Novey, Helv. Phys. Acta 26 (1953) 761
- 46 B. Spellmeyer, Dissertation FU Berlin 1976
- 47 R. Butt, H. Haas, and H. Rinneberg, Phys. Lett. 60A (1977) 323 , und Jahresbericht HMI-222 (1976) 74
- 48 P.G. Lucasson and R.M. Walker, Phys. Rev. 127 (1962) 1130
- 49 P. Raghavan, R.S. Raghavan, and E.N. Kaufmann, Phys. Lett. 48A (1974) 131
- 50 R.S. Raghavan and P. Raghavan, Phys. Lett. 36A (1971) 313
- 51 H. Bertschat, E. Recknagel, and B. Spellmeyer, Phys. Rev. Lett. 32 (1974) 18
- 52 R.R. Hewitt and T.T. Taylor, Phys. Rev. 125 (1962) 524
- 53 R.E. Watson, A.C. Gossard, and Y. Yafet, Phys. Rev. 140 (1965) A375
- 54 H.G. Müller, K. Krien, and E. Bodenstedt, Phys. Rev. B14 (1976) 5165
- 55 H.G. Müller and K. Krusch, 4th International Conference on Hyperfine Interactions, (1977) Madison, U.S.A.

- 56 O. Echt, E. Recknagel, A. Weidinger, and Th. Wichert,
Verhandl. DPG (VI) 12, M152 (1977)
- 57 M. Nakagawa, K. Böhning, P. Rosner, and G. Voql
wird veröffentlicht.
- 58 W. Schilling and K. Sonnenberg, J. Phys. F 3 (1973) 322
- 59 W. Schilling, G. Burger, K. Isebeck, and H. Wenzl in
"Vacancies and Interstitials in Metals" ed. A. Seeger
et al. North-Holland Publ. (1970) 255
- 60 W. Frank and A. Seeger, Rad. Eff. 1 (1969) 117
- 61 A. Sosin, Int. Conf. on Fundamental Aspects of Radiation
Damage in Metals, Gatlinburg (1975) I, 518
- 62 G. Wehr, K. Böhning, J. Kalus, G. Vogl, and H. Wenzl,
J. Phys. C 4 (1971) 324
- 63 K. Isebeck, R. Müller, W. Schilling, and H. Wenzl,
Phys. Stat. Sol. 18 (1966) 467
- 64 K. Schroeder, Ferienkurs der KFA Jülich (1975)
- 65 W. Sassin, Dissertation TH Aachen 1969
- 66 G. Burger, Dissertation TH Aachen 1965
- 67 H.J. Dibbert, K. Sonnenberg, W. Schilling, and U. Dedek,
Rad. Eff. 15 (1972) 115
- 68 A. Sosin and K.R. Garr, Phys. Rev. 161 (1967) 664
- 69 G. Duesing and W. Schilling, Rad. Eff. 1 (1969) 65
- 70 W. Bauer and A. Sosin, Phys. Rev. 147 (1966) 482
- 71 K. Sonnenberg, W. Schilling, H.J. Dibbert, K. Mika, and
K. Schroeder, Rad. Eff. 15 (1972) 129
- 72 K. Nishiyama, priv. Mitteilung
- 73 C. Hsiung, H. Hsiung, and A.A. Gordus,
J. Chem. Phys. 34 (1961) 535
- 74 W. Semmler, Dissertation FU Berlin 1976
- 75 R. Sielemann, Dissertation FU Berlin 1974

- 76 D.G. Doran, Rad. Eff. 2 (1970) 249
- 77 E. Karlsson, E. Matthias, K. Siegbahn (Hrsg.),
"Perturbed Angular Correlations", North-Holland Publ.Comp.
Amsterdam (1964)

Diese Arbeit entstand im Bereich Kern- und Strahlenphysik des Hahn-Meitner-Institutes Berlin.

Für die Arbeitsmöglichkeit und Mithilfe sowie viele Anregungen und Diskussionen danke ich A. Bader, H. Bertschat, H. Grawe, H. Haas, I. Lang, K.H. Lindenberger, M. Menningen, H. Rinneberg und W. Semmler.

Den Herren T. Butz, G.M. Kalvius, W. Mansel, A. Vasquez und G. Vogl danke ich für die Arbeitsmöglichkeit, die gute Zusammenarbeit und viele hilfreiche Diskussionen während meiner Gastexperimente in den Instituten E21 und E15 des Physik-Departments der Technischen Universität München.

L E B E N S L A U F

Geboren am	27.6.1943 in Bielefeld als Sohn des Tischlers Hans Butt und seiner Frau Frieda
Eheschließung	10.8.1972 mit Barbara Ulbricht
Kinder	Katharina * 1.5.1973 Wolfgang * 20.7.1976
Grundschule	1949-1953 Martinischule in Bielefeld
Realschule	1953-1959 Bosseschule in Bielefeld
Lehre	1959-1962 als Fernmeldemonteur bei der Fa. Telefonbau u. Normalzeit, Bielefeld
Zusatzpraktika	1962-1963 bei verschiedenen Industriefirmen
Ingenieur- studium	WS63-SS66 Elektrotechnik (Nachrichtentechnik) an der Staatl. Ing.-Schule Gauß in Berlin
Hochschul- reife	1966 durch Ingenieurschulabschluß mit Zusatzprüfung beim Senator f. Schulwesen in Berlin
Hochschul- studium	WS66-WS72 Physikstudium an der Freien Universität Berlin
Diplom	Dez. 1972 im Hauptfach Physik mit der Arbeit "Messung der Kernquadrupolwechselwirkung von ^{111}Cd ($5/2^+$) in Kadmiummetall nach einer (d,p) - Reaktion und Untersuchung der strahlungsinduzierten Gitterschäden"

Seit 1973 bin ich als wissenschaftlicher Angestellter am Hahn-Meitner-Institut Berlin im Bereich Kern- und Strahlenphysik beschäftigt und arbeite innerhalb der Gruppe "Kernmomente und innere Felder" auf dem Gebiet der Nuklearen Festkörperphysik.



